

THESE

présentée

DEVANT L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

en vue de l'obtention

du Diplôme de DOCTEUR INGENIEUR

Option : Automatique

par

MICHEL DELERIS

Ingénieur AM

ANALYSE - MODELISATION - OPTIMISATION D'UN SOUS-ENSEMBLE DE PRODUCTION DE ZINC

Soutenue le 7 juillet 1981, devant la Commission d'Examen :

MM.

Y. SEVELY

Président

J. BERNUSSOU

M. DARCY

J. DUFOUR

A. TITLI

}
Examineurs

THESE

présentée

DEVANT L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

en vue de l'obtention

du Diplôme de DOCTEUR INGENIEUR

Option : Automatique

par

MICHEL DELERIS

Ingénieur AM

DEL 2282

ANALYSE - MODELISATION - OPTIMISATION D'UN SOUS-ENSEMBLE DE PRODUCTION DE ZINC

Soutenu le 7 juillet 1981, devant la Commission d'Examen :

MM.

Y. SEVELY

Président

J. BERNUSSOU

M. DARCY

J. DUFOUR

A. TITLI

Examineurs

UNIVERSITE PAUL SABATIER

PRESIDENCE

M. MARTIN Président
 M. LARENG 1er Vice-Président
 M. MARPINARD 2ème Vice-Président

ORDRE DES SCIENCES

HONORARIAT

M BEDOS Professeur honoraire
 M BLAIZOT Doyen honoraire
 M CAPDECOMME Doyen honoraire, Recteur honoraire, Correspondant de l'Institut, Professeur honoraire
 M COUCHET Professeur honoraire
 M DUPIN Professeur honoraire
 M DUPOUY Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire
 M DURAND Emile Doyen honoraire, Professeur honoraire
 M FERT Professeur honoraire
 M GALLAIS Professeur honoraire
 M GAUSSEN Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
 M LESBRE Professeur honoraire
 M MARGULIS Professeur honoraire
 M MASDUPUY Professeur honoraire
 M MATHIS Doyen honoraire
 M MIGNONAC Professeur honoraire
 M MORQUER Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
 M PERRIER Professeur honoraire
 M SECONDAT Professeur honoraire
 M SERFATY Professeur honoraire
 M TEISSIE SOLIER Professeur honoraire
 M TRICHE Professeur honoraire
 M VANDEL Professeur honoraire, Membre de l'Institut

CORPS ENSEIGNANT

PROFESSEURS DE CLASSE EXCEPTIONNELLE ET DE 1ère CLASSE

M HURON Mathématiques Appliquées
 M LEDOUX Zoologie Appliquée
 M MATHIS Chimie
 M ORLIAC Géochimie et Minéralogie
 M LAFOURCADE Physique
 M ANGELIER Zoologie
 Mlle de FERRE Botanique
 M FARRAN Minéralogie et Géotechnique
 M LAUDET Physique Théorique et Calcul Numérique
 M LAGASSE Electrotechnique
 M BLANC Physique Nucléaire
 M LEREDDE Botanique
 M LELUBRE Géologie
 M LALAGUE Mathématiques Générales
 M BOUIGUE Astronomie
 M ASSELINEAU Chimie Biologique
 M MAURET Chimie Systématique
 M AGID Physiologie
 M MONTANT Cryptogamie
 M GAUTIER Physique
 M CRUMEYROLLE Mathématiques
 M GOURINARD Géologie
 M PULOU Minéralogie
 M CAMBOU Physique Spatiale
 M LACOSTE Electrotechnique
 M THIBAUT Mécanique Rationnelle et Appliquée
 M MASCART Mathématiques
 M MEDIONI Psychophysiologie
 M RAYNAUD P Physiologie Animale
 M ZALTA Chimie Biologique
 M SEVELY Electrotechnique
 M POMMIEZ Mathématiques
 M REY Paul Biologie Végétale
 M COULOMB Physique
 M TRINQUIER Physique
 M MARONI Chimie
 M BEETSCHEN Biologie Générale
 M DERACHE Physiologie Animale
 M SATGE Chimie Organique
 M LATTES Chimie
 M VEDRENNE Géophysique
 M DURAND DELGA Géologie, Correspondant de l'Institut
 M CARRARA Physique
 M MAHENC Chimie
 M MIROUSE Géologie
 M BITSCH Zoologie

M DEGEILH Physique
 M MARTIN J.C Génie Electrique
 M REY Gérard Electronique, Electrotechnique, Automatique
 M SICARD Biologie Génétique
 M SOUQUET Géologie
 M TOUZE Physiologie Végétale
 M FRASNAY Mathématiques (Algèbre et Combinatoire)
 M CASSAGNAU Zoologie
 M CAUSSINUS Mathématiques Appliquées (Statistiques Appliquées)
 M PESCIA Physique
 M PICCA Physique de l'Atmosphère
 M BAUDIERE Botanique Fondamentale et Pyrénéenne
 M BARRANS Chimie Physique Organique
 M POILBLANC Chimie Minérale
 M PERENNOU Informatique
 M ATTEIA Mathématiques
 M CASTAN Informatique
 M COLLETTE Physique
 M REME Mesures Physiques
 M CUPPENS Mathématiques

PROFESSEURS DE 2ème CLASSE

M MERIC Mathématiques Appliquées
 Mme LECAL Zoologie
 M PILOD Physique
 M LARROQUE Physique
 Mme LAUDET Mathématiques Informatique
 LAPEYRE
 M BERTRAND Chimie
 M DESQ Mathématiques
 M ROCARD Electronique
 M GUERIN Mathématiques
 M SCHNEIDER Biologie Cellulaire
 M de LOTH Chimie Physique
 M SAPORTE Physique
 M THENOZ Génie Civil
 M DURAND Ph. Physique
 M FONTAN Physique Nucléaire
 M BAUDRAS Chimie Biologique
 M CALVET Mécanique des Fluides
 M PAGANI Physique
 M BEAUFILS Informatique
 M BERTHELEMY Zoologie
 M TERJANIAN Mathématiques
 M MORUCCI Génie Biologique et Médical
 M BONEL Chimie
 M SOTIROPOULOS Chimie Organique
 M VERDIER Physique
 M ETTINGER Mathématiques
 M BONNET Louis Biologie
 M JOSSERAND Mesures Physiques
 M ROUTIE Génie Chimique
 M COTTU Génie Mécanique
 M HURAU Physique
 Mme GERVAIS Chimie Inorganique
 M BANCEL Mathématiques
 M LOUARN Génétique
 M BOUDET Physiologie Végétale
 M LETAC Mathématiques
 M HERAULT Chimie
 M GRANDET Génie Civil
 Mlle BARBANCE Mathématiques
 M GILLY Génie Mécanique
 M MARAL Physique
 M LEGRAND Génie Civil
 M ABATUT Electronique, Electrotechnique, Automatique
 M MAUSS Mécanique
 M BETOURNE Informatique
 M CAMPAN Psychophysiologie
 M CLERC Mécanique
 M GRIFONE Mathématiques
 M COUOT Mathématiques, Analyse Numérique
 M NGUYEN THANH VAN
 M TRAVERSE Problèmes Chimiques de l'Energie
 M ALRAN Génie Chimique
 M REY J Géologie Sédimentaire et Paléontologie
 M DARTIGUENAVE Chimie Minérale Moléculaire
 M PRADINES Mathématiques
 M GALINIER Informatique
 M VIGNOLLE Informatique
 M DEPARIS Embryologie
 M CAVALIE Physiologie Végétale

M MASSOL	Chimie des Composés Organiques et Organominéraux d'intérêt biologique
M HARTMANN	Mécanique
M ROUSSET	Chimie Appliquée (Matériaux)
M TARDY	Sciences de la Terre et Aménagement
M HOLLANDE	Biologie Cellulaire
M DUGAS	Physique des Énergies Nouvelles
M BENOIT CATTIN	Physique
M COMTAT	Chimie Appliquée
M LANEELLE	Biochimie
M LUGUET	Informatique Fondamentale et Appliquée
M BONNET J.J.	Chimie Minérale
M PERAMI	Minéralogie et Matériaux
M AUDOUNET	Mathématiques
M PERIE	Chimie Organique

PROFESSEURS ASSOCIES

M GUMOWSKI	Mathématiques
M COLLINS	Géomé Mécanique

CHERCHEURS DU C.N.R.S.

DIRECTEURS DE RECHERCHE

M GIRALT Georges
M LABARRE Jean
M LAURENT Jean Pierre
M LEGRIS
M MARTINOT Henri
M MAZEROLLES
M PRADAL
M WOLF Robert
M ESTEVE Daniel
M GALY Jean

MAITRES DE RECHERCHE

M AGUILAR MARTIN José
Mme ASSELINEAU Cécile
M AZEMA Pierre
M BUXO Jean
Mme DARTIGUENAVE M.
M HAWKES Peter
M HOUALLA Doured
M JEREBZOFF
M MALRIEU J.P.
Mme MARONI Yvette
Mme MATHIS
M MUNOZ Aurelio
M NAVECH
M PRAJOUX Roland
M SEVELY Jean
M VACQUIE Serge
Mme BENAZETH Nicole
Mme DUPRAT Anne Marie

CORPS DES OBSERVATOIRES ASTRONOMIQUES ET INSTITUTS DE PHYSIQUE DU GLOBE

Mme ANDRILLAT Y	Astronome titulaire
M COUPINOT G	Astronome adjoint
M LEROY J. Louis	Astronome adjoint
M MIANES	Astronome adjoint
M PEDOUSSAUT A	Astronome adjoint
M ROBLEY Robert	Physicien titulaire
M ROSCH Jean	Astronome titulaire
M SAISSAC Joseph	Physicien titulaire

ADMINISTRATION

M PRINEAU	Secrétaire Général de l'Université
-----------	------------------------------------

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

PRESIDENCE

M MONTEL	Président
M MARTY	Vice Président
M ENJALBERT	Vice Président
M ANDRE	Vice Président
M CONSTANT	Vice Président

HONORARIAT

M BIREBENT	Professeur honoraire
M CASTAGNETTO	Professeur honoraire
M DIEHL	Professeur honoraire
M ESCANDE	Professeur honoraire, Membre de l'Institut
M HAMANT	Professeur honoraire

PROFESSEURS DE CLASSE EXCEPTIONNELLE ET DE 1^{ère} CLASSE

M NOUGARO	Hydraulique Générale et Appliquée
M GARDY	Génie Chimique
M VOIGT	Chimie Minérale
M MONTEL	Chimie Inorganique
M THIRRIOT	Hydraulique
M GRUAT	Hydraulique
M BUGAREL	Génie Chimique
M DAT	Hydraulique
M MARTY	Electronique
M ANGELINO	Génie Chimique
M HOFFMANN	Electronique
M TRANNOY	Electrotechnique

PROFESSEURS DE 2^{ème} CLASSE

Mlle BERDUCOU	Physiologie Végétale
M FALLOT	Biotechnologie Végétale Appliquée
M ENJALBERT	Génie Chimique
M TRUCHASSON	Hydraulique
M DABOSI	Métallurgie et Refractaires
M LEFEUVRE	Electronique
M CALMON	Chimie Agricole
M GILOT	Génie Chimique
M MATHIEU	Chimie Appliquée
M BAUDRAND	Electronique
M BOURGEAT	Pédologie
M MATHEAU	Electronique
M BAJON	Electronique
M COUDERC	Génie Chimique
M GOURDENNE	Chimie
M LENZI	Chimie Industrielle
M MASBERNAT	Hydraulique
M TERRON	Zoologie
M BUIS	Biologie Quantitative
M CONSTANT	Chimie Minérale
M COSTES	Electrotechnique
M ECOCHARD	Agronomie
M CANDAU	Zootecnie
M LABAT	Ichtyologie Appliquée
M MORELIERE	Electronique
M GASET	Chimie Industrielle
M BRUEL	Informatique
M ALBERTINI	Cytologie et Pathologie Végétales
M BELLET	Mécanique - Hydraulique
M FABRE	Mécanique Hydraulique
M FOCH	Electronique, Electrotechnique, Automatique
M MORA	Génie Chimique
M MORARD	Physiologie Végétale Appliquée
M MURATET	Génie Chimique
M NOAILLES	Mathématiques

ADMINISTRATION

M CRAMPES	Secrétaire Général
-----------	--------------------

INSTITUT DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

M SARAZIN	Directeur Général
-----------	-------------------

PROFESSEURS DE CLASSE EXCEPTIONNELLE ET DE 1^{ère} CLASSE

M ROQUES	Chimie Appliquée, Génie Chimique
M GRATELOUP	Electronique, Electrotechnique, Automatique
M MASO	Génie Civil
M MIRA	Electronique, Electrotechnique, Automatique
M DURAND Gilbert	Biologie et Biochimie Appliquée
M ASKENAZY	Physique Atomique, Physique du Solide
M LETURCO	Electronique, Electrotechnique, Automatique
M SCHUTTLER	Electronique, Electrotechnique, Automatique

PROFESSEURS DE 2^{ème} CLASSE

M FAGET	Physique Atomique, Physique du Solide
M BARTHET	Mécanique
M TITLI	Electronique, Electrotechnique, Automatique
M BROUSSEAU	Physique Atomique, Physique du Solide
M SIRIEYS	Mécanique
M BESOMBES VAI LHE	Chimie Appliquée, Génie Chimique
M VERDIER	Chimie Organique, Minérale et Analytique
M BOUDET Rene	Génie Mécanique
M BROH	Physique Atomique, Physique du Solide
M JAVELAS	Génie Civil
M LACAZE	Mathématiques II
M FORBAIN	Génie Civil
M MARTINEZ	Electronique, Electrotechnique, Automatique

ADMINISTRATION

M CROS	Secrétaire Général
--------	--------------------

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au sein du LABORATOIRE D'AUTOMATIQUE et d'ANALYSE des SYSTEMES de C.N.R.S. et plus particulièrement dans l'opération "Analyse des Systèmes Complexes" (Responsable : A. TITLI) de l'équipe "Décomposition et Commande des Systèmes Complexes" (Responsable : J. BERNUSSOU), en étroite collaboration avec les Services "Recherche" et "Production" de la Société VIEILLE-MONTAGNE (Responsables : MM. DARCY et ZANET).

Je tiens à remercier :

- MM. Y. SEVELY : Professeur à l'Université P. Sabatier - TOULOUSE.*
- J. BERNUSSOU : Chargé de recherche CNRS au LAAS - TOULOUSE - Docteur d'Etat es Sciences.*
- M. DARCY : Ingénieur à la Société VIEILLE-MONTAGNE VIVIEZ - Chef du Service Recherche.*
- J. DUFOUR : Assistant à l'Université C. BERNARD - LYON - Docteur d'Etat es Sciences.*
- A. TITLI : Professeur à l'INSA - TOULOUSE. Directeur du Département de Génie-Electrique.*

d'avoir accepté de participer à mon jury et pour leurs conseils et remarques.

Je suis également reconnaissant envers mes collègues de bureau pour la compagnie agréable et les distractions, même quelques fois malgré moi, qu'ils ont su me donner, ainsi qu'à tous les membres de l'Equipe pour leurs diverses discussions qui m'ont aidé dans cette étude.

Je ne voudrais surtout pas oublier E. CHACON avec qui j'ai travaillé durant ces deux années et que je ne peux remercier tant ce geste a peu de valeur devant l'amitié qui nous lie.

Je remercie enfin toutes les personnes du LAAS et de la Société VIEILLE-MONTAGNE qui, de près ou de loin, et chacun suivant ses moyens, m'ont permis par leur participation de mener à bien cette tâche.

TABLE DES MATIERES

<u>Introduction générale</u>	1
<u>Chaptre I - LE COMPLEXE DE PRODUCTION DE ZINC</u>	5
- Introduction	7
I-1 - <u>La production électrolytique du zinc</u>	8
I-1-1 - Synoptique de l'élaboration du zinc	8
I-1-2 - Le Grillage	9
I-1-3 - La Préparation des Solutions	10
I-1-4 - Les Bacs	10
I-2 - <u>La Préparation des Solutions</u>	11
I-2-1 - Synoptique de la Préparation des Solutions	11
I-2-2 - Les Lixiviations	12
I-2-3 - Le Traitement Humide des Résidus	13
I-2-4 - La Purification	13
I-2-5 - Le Traitement des Boues Bleues	13
I-3 - <u>Le Traitement Humide des Résidus</u>	13
I-3-1 - Synoptique du Traitement Humide des Résidus	14
I-3-2 - L'Hydrolyse	15
I-4 - <u>Objet de l'étude</u>	17
I-4-1 - Fonctionnement de l'Hydrolyse au début de l'étude	17
I-4-2 - Contraintes et problèmes liés à l'Hydrolyse	19
I-4-3 - Améliorations apportées	19

<i>I-4-4 - Problèmes instrumentaux posés par l'Hydrolyse</i>	20
<i>I-4-5 - Objet de l'étude sur le THR</i>	21
 <u>Conclusion</u>	 22
 <u>Annexe</u>	 23
 <i>- Différentes réactions en jeu dans l'Hydrolyse</i>	
 <u>Chapitre II - METHODOLOGIE D'ANALYSE DES INTERACTIONS DANS LES SYSTEMES COMPLEXES</u>	 25
 <i>- Introduction</i>	 27
 <i>II-1 - <u>Rappels d'analyse statistique des données</u></i>	 28
 <i>II-1-1 - Concepts de base</i>	 28
 <i>II-1-2 - Coefficient de corrélation</i>	 28
 <i>II-2 - <u>Concepts de Théorie de l'Information</u></i>	 31
 <i>II-2-1 - Introduction</i>	 31
<i>II-2-2 - Entropie de SHANNON dans le cas discret</i>	32
<i>II-2-2-1 - Entropie d'une variable</i>	
<i>II-2-2-2 - Entropie conjointe de deux variables</i>	
<i>II-2-2-3 - Entropie conditionnelle</i>	
<i>II-2-2-4 - Propriété de l'entropie</i>	
<i>II-2-3 - Entropie dans le cas continu</i>	35
<i>II-2-4 - Transinformation</i>	36
<i>II-2-4-1 - Définition</i>	
<i>II-2-4-2 - Propriété</i>	
<i>II-2-5 - Coefficient de couplage</i>	37
<i>II-2-6 - Généralisation</i>	38
 <i>II-3 - <u>Particularités liées au calcul du coefficient de couplage</u></i>	 39
 <i>II-3-1 - Influence du nombre de classes</i>	 39
<i>II-3-2 - Recherche de relations à partir des distributions de probabilité</i>	40

II-3-2-1 - Cas monodimensionnel	
II-3-2-2 - Cas multidimensionnel	
II-3-2-3 - Conséquence	
II-4 - <u>Méthode comparative : corrélation - couplage</u>	49
<u>Conclusion</u>	53
<u>Chapitre III - APPLICATION AU TRAITEMENT HUMIDE DES RESIDUS</u>	55
- Introduction	57
III-1 - <u>Ajustement de données</u>	58
III-1-1 - Campagne de mesures	59
III-1-2 - Ajustement de données	60
III-1-2-1 - Méthode	
III-1-2-2 - Application à l'Hydrolyse	
III-1-2-3 - Interprétation.	
III-2 - <u>Modélisation</u>	66
III-2-1 - Précipitation du fer	66
III-2-1-1 - Approche analytique	
III-2-1-2 - Approche statistique	
III-2-2 - Pertes Zinc :	77
III-2-2-1 - Recherche de variables explicatives	
III-2-2-2 - Approche statistique	
III-2-3 - Temps de filtration	90
III-2-3-1 - Mesure du temps de filtration	
III-2-3-2 - Approche statistique	
<u>Conclusion</u>	92
<u>Annexes :</u>	95
1 - Incertitude sur le bilan massique	95
2 - Définition et interprétation du test de FISHER	99
3 - Tableaux des coefficients des modèles de précipitation fer	105
4 - Tableaux des coefficients des modèles Zn/Fe et filtration	107
5 - Matrices de corrélation et couplage complètes	111

<u>Chapitre IV - RECHERCHE D'UN FONCTIONNEMENT OPTIMAL</u>	113
- Introduction	115
IV-1 - <u>Position du problème</u>	116
IV-2 - <u>Résolution</u>	117
IV-2-1 - Programmation dynamique	117
IV-2-2 - Application au THR	120
IV-3 - <u>Résultats</u>	124
<u>Conclusion</u>	130
<u>CONCLUSION GENERALE</u>	131
<u>Bibliographie</u>	135

I N T R O D U C T I O N

Hydrolyse, Goethite, ... ne sont pas des mots qu'il est courant d'entendre dans un Laboratoire d'Automatique. De même que Analyse Informatique, Programmation Dynamique... n'animent pas souvent les conversations dans une Usine de production de Zinc. Cependant, lorsqu'un contrat, ayant pour objectif l'automatisation d'une étape de traitement hydrométallurgique, les réunit, il est nécessaire de faire en sorte que ces expressions aient la même signification pour les deux parties concernées.

La satisfaction d'un tel objectif passe par une phase Analyse puis Modélisation-Optimisation qui fait l'objet de ce mémoire. L'Analyse Statistique des Données et l'Analyse Informatique sont les outils de base de l'étude de ce système complexe qu'est le Traitement Hydrométallurgique des Résidus.

C'est pourquoi, dans un premier chapitre, nous exposons le fonctionnement global de l'usine de production de Zinc, afin de familiariser le lecteur avec les termes que l'on retrouve tout au long du mémoire. Nous définissons plus précisément la phase Hydrolyse du Traitement Hydrométallurgique des Résidus qui fait l'objet de l'étude, en détachant les points fondamentaux sur lesquels nous apportons notre contribution.

Le deuxième chapitre définit la méthodologie d'Analyse des Interactions dans ce type de système complexe. Méthodologie basée sur une comparaison entre le coefficient de corrélation linéaire, et un coefficient de couplage représentant l'Information entre variables, définie par la Théorie de l'Information.

Pour cela, nous rappelons dans un premier temps les définitions principales auxquelles nous faisons référence. Nous montrons ensuite l'intérêt d'une telle méthode pour la mise en valeur de relations entre variables, et pour la détermination de non linéarités.

L'application de cette méthode à la recherche de modèles du fonctionnement de l'Hydrolyse, dont la forme n'est pas connue a priori, fait l'objet du troisième chapitre au cours duquel les difficultés inhérentes à l'Analyse des Données en général sont exposées. Plus particulièrement, nous montrons comment une procédure d'ajustement des données

permet la détection et la correction d'erreurs de mesure. De même que le test de différentes formes de modèles facilite l'interprétation des résultats.

L'analyse de ces modèles permet déjà de dégager une allure de fonctionnement optimal qu'il s'agira de confirmer par la suite.

Enfin, dans le quatrième chapitre, les modèles statistiques ainsi obtenus servent de support à la résolution, par programmation dynamique, d'un problème d'optimisation multi-critère permettant l'obtention du meilleur compromis entre deux critères en fait conflictuels.

Nous tirons finalement les conclusions en ce qui concerne l'analyse statistique de systèmes complexes pour lesquels une modélisation de connaissance est quasiment impossible. Nous montrons aussi dans ce cas, l'intérêt de l'implantation d'une structure de commande hiérarchisée tenant compte en permanence de la réalisation du meilleur compromis entre les critères conflictuels. L'importance relative de chacun est définie en fonction des contraintes de fonctionnement du processus.

CHAPITRE I

LE COMPLEXE DE PRODUCTION DE ZINC

INTRODUCTION

La proximité des gisements de charbon (DECAZEVILLE) et de minerais (MASSIF CENTRAL, CEVENNES, PYRENEES) a favorisé en 1871 l'implantation de la Société VIEILLE-MONTAGNE sur le site de VIVIEZ (AVEYRON).

Sa production actuelle de l'ordre de 100 000 tonnes de Zinc brut par an lui permet d'assurer 1/3 de la consommation française en Zinc dont les principales utilisations sont résumées dans le tableau n° I.1.

Galvanisation	102 000
Laminoir	78 000
Laiton	76 000
Alliages (Zamak)	51 000
Oxydes	41 000
Fil métallisation	6 000
Galvanoplastie	4 000
Protection cathode	400
Piles	400

—————
≈ 360 000 Tonnes

Tab. I.1. : Consommation française en Zinc suivant ses divers sous-produits pour l'année 1980 (en Tonnes).

La concurrence étrangère et les conditions locales ont contraint la Société VIEILLE-MONTAGNE à traiter sur place une partie de sa production pour en augmenter la valeur ajoutée. (Tableau I.2).

Zinc brut :	100 000
dont : Zinc laminé :	50 000
Alliages :	10 000
Pastilles :	9 000
Zinguerie :	4 000
Acide Sulfurique	50 000

Tab. I.2. : Production moyenne annuelle de l'usine de VIVIEZ (en Tonnes).

Dès 1922, le procédé électrolytique a été développé à VIVIEZ pour la première fois en EUROPE et a rapidement remplacé le procédé thermique, permettant ainsi la production d'un Zinc d'une grande pureté. Mais un tel procédé nécessite une importante consommation d'énergie. (Tableau I.3).

Minerai	160 000	Tonnes
Energie électrique	400	GWh
Eau	6	Mm ³

Tab. I.3. : Consommations moyennes annuelles de l'usine VIVIEZ

I-1 - LA PRODUCTION ELECTROLYTIQUE DU ZINC

I-1-1 - Synoptique de l'élaboration du Zinc

L'élaboration électrolytique du Zinc est à l'heure actuelle la méthode permettant d'obtenir le Zinc de meilleure qualité, définie par la pureté du métal obtenu.

Zn	52,3	%
S	30,9	
Fe	6,46	
Pb	1,66	
Cu	0,28	
Cd	0,17	
As	0,09	
Ag	90	g/tonne

Divers (Na, K, Al, Co,...) 8%.

Tab. I.4. : Composition de la Blende (moyenne 1981).

La production peut être subdivisée en trois phases principales (Fig. I.1.) : [33].

- Le Grillage,
- La Préparation des Solutions,
- L'Electrolyse.

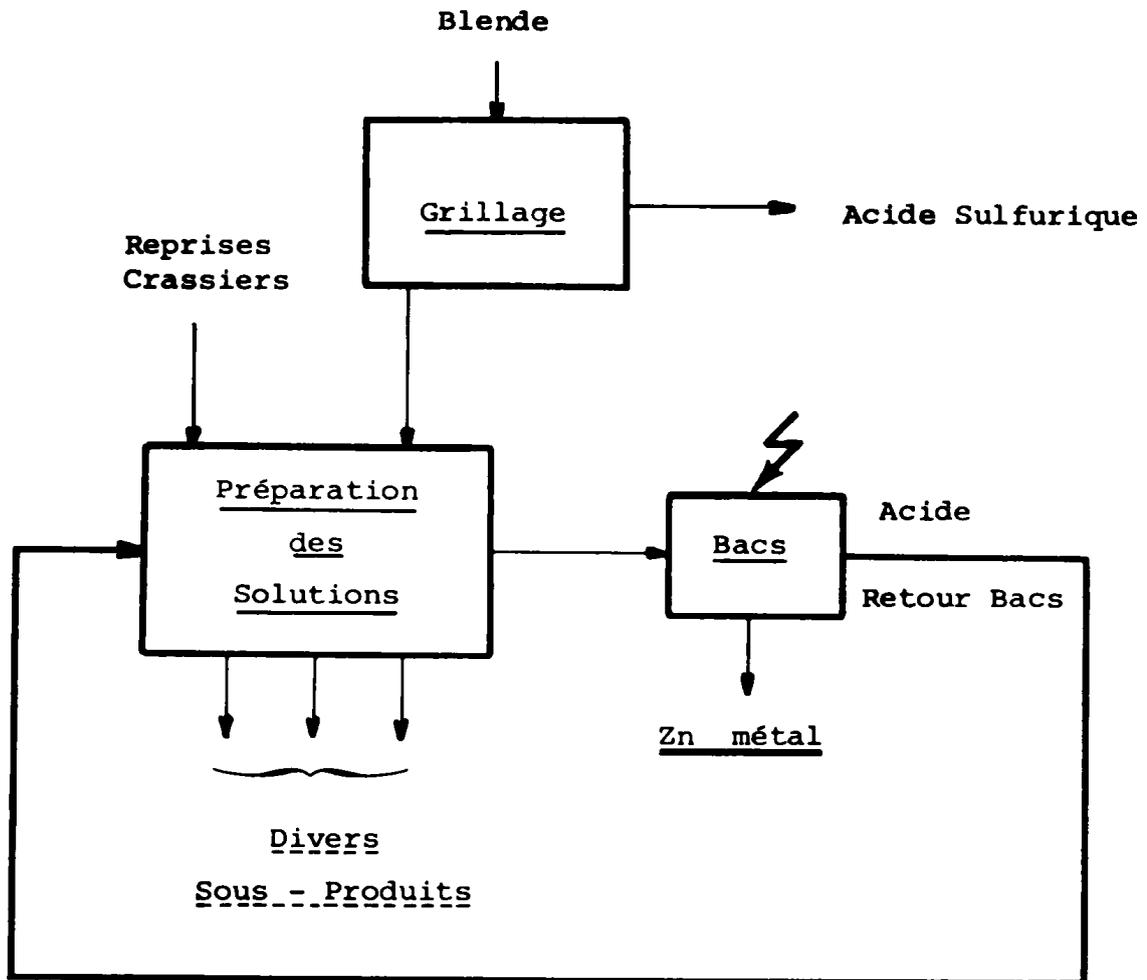
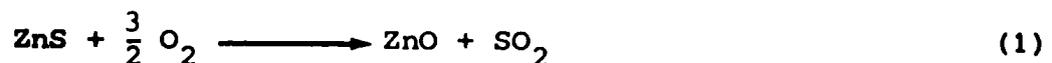


Fig. I.1. : Schéma d'élaboration du Zinc.

I-1-2 - Le Grillage

La blende y est oxydée en calcine (Zn o).



Les sous-produits résultant de cette transformation sont :

- L'acide sulfurique concentré obtenu à partir du gaz sulfureux (SO₂), dont une grande partie est vendue.

- La vapeur d'eau produite par l'exothermie de la réaction, réutilisée dans l'usine.

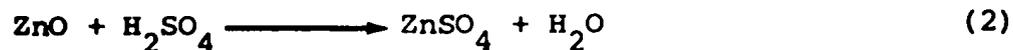
La création de calcine (1) est bien entendu la réaction principale du Grillage, cependant, chacun des métaux contenus dans la Blende réagit aussi, plus particulièrement le Fer suivant la réaction parasite :



qui a pour effet de bloquer une partie du Zinc. Il en est de même pour certains des métaux énumérés tableau I.4. venant "polluer" la calcine.

I-1-3 - La Préparation des Solutions

La calcine y est attaquée par l'acide régénéré sur les bacs pour former une solution de sulfate de Zinc (Zn SO_4) (2).



Mais la réalité n'est pas aussi simple. En effet, nous avons vu que la calcine, contenant de nombreuses impuretés, les transmet à la solution.

Un second rôle de la préparation des solutions est donc d'épurer la solution avant qu'elle ne soit électrolysée. Ce qui permet d'obtenir à la fois un Zinc très pur et un bon rendement en courant sur les bacs.

I-1-4 - Les Bacs

La solution épurée de sulfate de Zinc (liqueur de tête) est, après une dernière décantation, répartie dans les divers bacs d'électrolyse. Le Zinc métallique se dépose sur la cathode d'aluminium et est décollé après 48 h de déposition.

Le Zinc obtenu a une pureté de 99,995%.

La régénération de l'acide se fait sur les anodes. Cet acide est appelé Acide Retour Bacs (RB) et est recyclé sur les diverses étapes de la Préparation des Solutions.

I-2 - LA PREPARATION DES SOLUTIONS

I-2-1 - Synoptique de la Préparation des Solutions

Les différentes étapes de la Préparation des Solutions ont pour objectif, outre la mise en solution de la Calcine aux Lixiviations, l'épuration de la solution ainsi obtenue au Traitement Humide des Résidus, au Traitement des Boues Bleues, en Purification. (Lixiviations: Lavage d'un mélange par un solvant pour en extraire les produits solubles.)

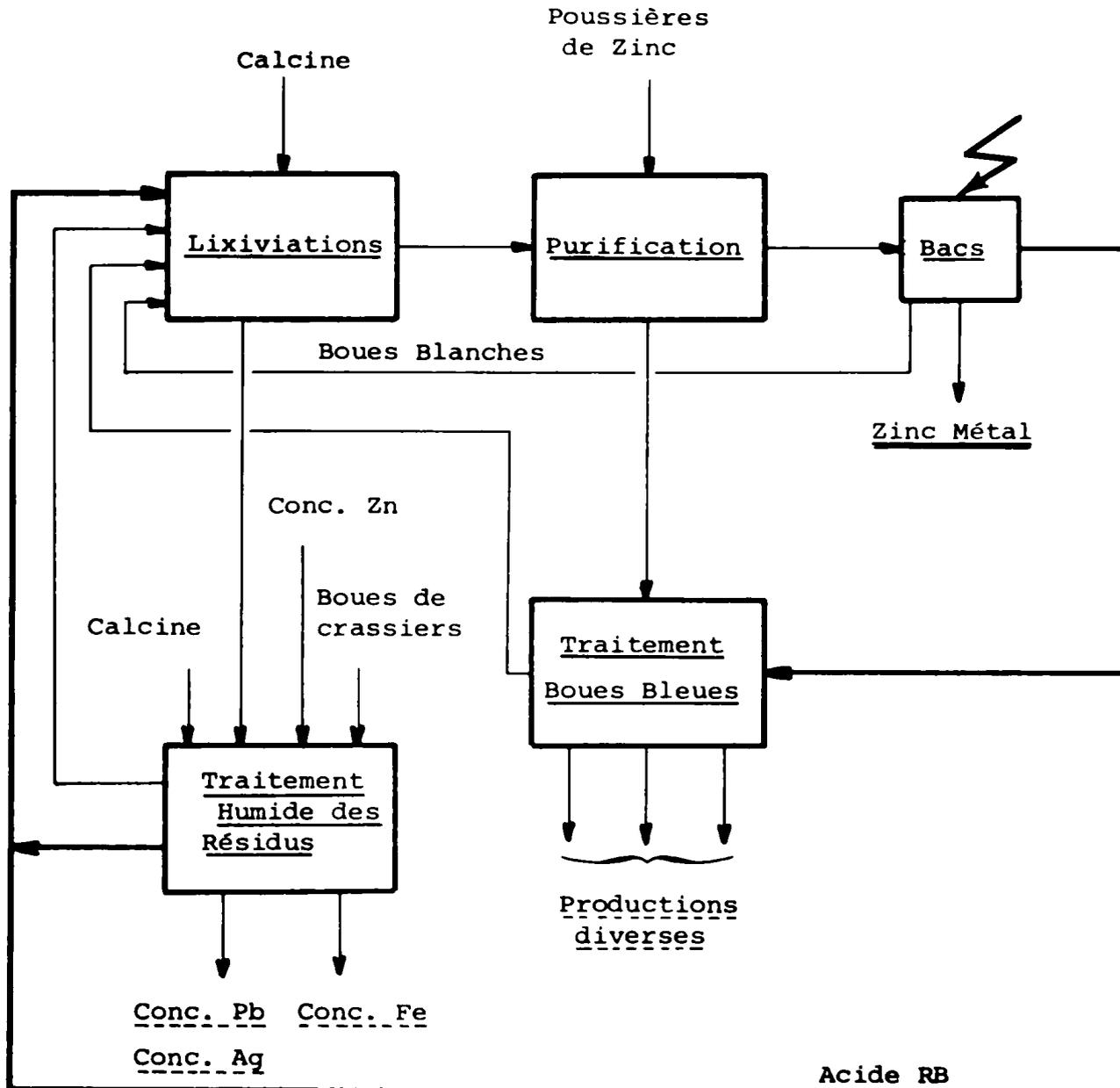


Fig. I.2. : Synoptique de la Préparation des Solutions

Seules les Lixiviations subsisteraient si la Calcine n'était que de l'Oxyde de Zinc. Comme ce n'est pas le cas, il existe plusieurs traitements, spécifiques aux différents métaux en présence dans la liqueur (fig. I.2.).

I-2-2 - Les Lixiviations

Les Lixiviations comprennent deux traitements :

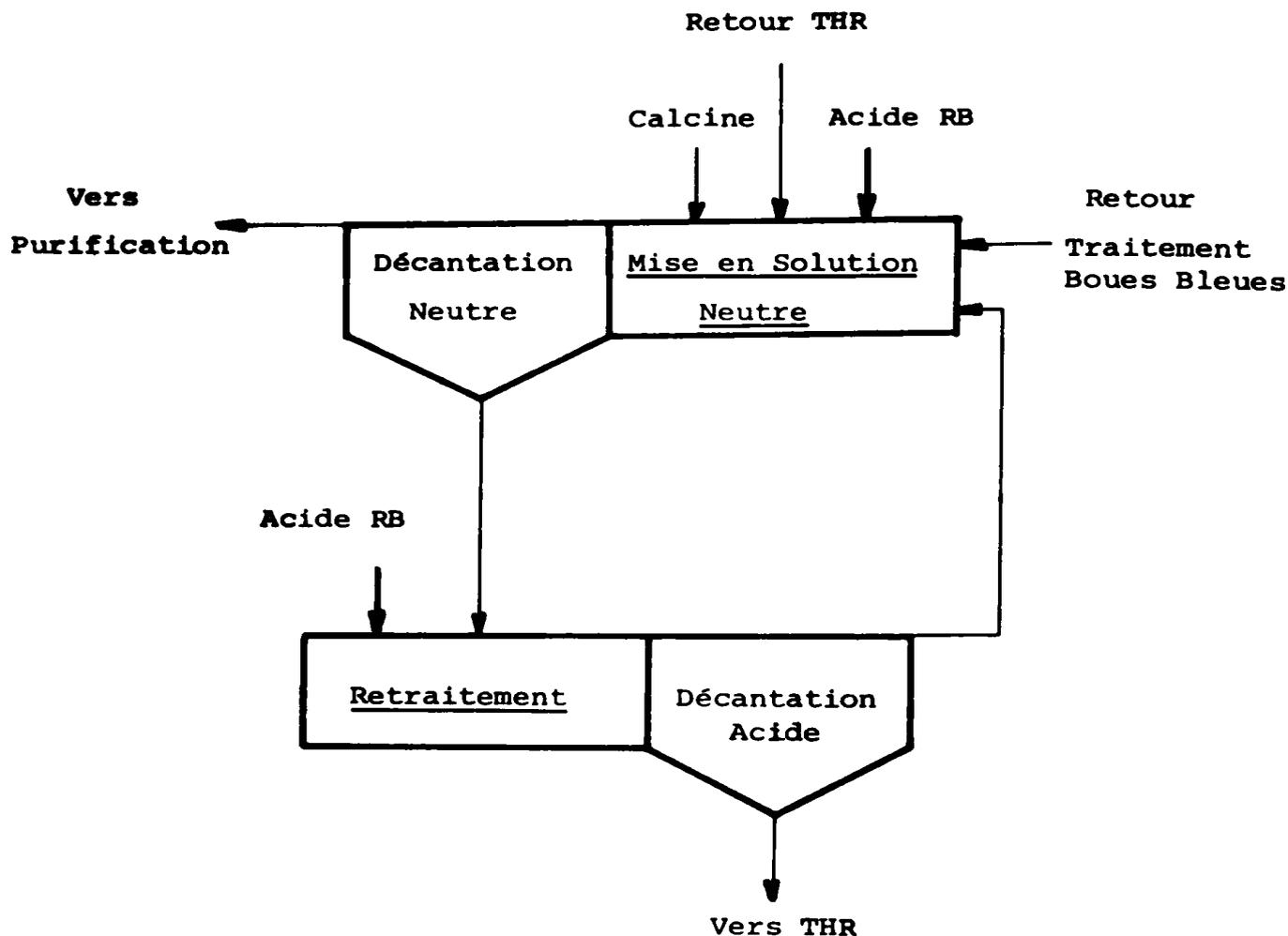


Fig. I.3. : Synoptique des Lixiviations

La Mise en Solution Neutre assure une première purification en dissolvant la calcine par l'Acide RB ; elle reçoit aussi les retours des divers traitements. Une décantation suit : la liqueur est envoyée à la Purification, les boues reçoivent un traitement plus acide : le Retraitement.

Le Retraitement récupère en solution les traces restantes de Zinc soluble. Cette solution impure est recyclée à la Mise en Solution Neutre.

Les boues de Lixiviations sont envoyées au Traitement Humide des Résidus, elles contiennent surtout des Ferrites de Zinc et du sulfate de plomb.

1-2-3 - Le Traitement Humide des Résidus

Dans le Traitement Humide des Résidus (THR), les boues de Lixiviations sont traitées de façon à récupérer le Zinc, séparer le Plomb et l'Argent insolubles, et éliminer le Fer.

Le THR faisant l'objet de l'étude, son fonctionnement sera détaillé par la suite.

1-2-4 - La Purification

Les dernières impuretés encore contenues dans la liqueur de Lixiviation y sont éliminées. Une partie de cette liqueur est d'abord décuvrée, puis en deux étapes de purification on obtient une liqueur neutre prête à être électrolysée.

Les divers Résidus sont ensuite traités au Traitement des Boues Bleues.

I-2-5 - Le Traitement des Boues Bleues

Cette étape doit son nom à la coloration bleue des Résidus de Purification fortement concentrés en Oxyde de Cuivre. Une succession d'attaques à l'acide RB et une cémentation à la poussière de Zinc conduisent à la récupération du Zinc des ciments de Purification pour recyclage en Lixiviation, à la valorisation du Cadmium (Cd), du Cuivre et à la purge du circuit en Nickel (Ni), Cobalt (Co), Thallium (Tl).

1-3 - LE TRAITEMENT HUMIDE DES RESIDUS

Ce traitement hydrométallurgique, démarré en 1977, remplace un traitement thermique (Cubilot) présentant un certain nombre d'inconvénients (Travail pénible, entretien, coût, seul traitement thermique). [12]

Son but est d'assurer d'une part, la récupération du Zinc entraîné par la formation des Ferrites (Fe_2O_3 ZnO), d'autre part la mise hors circuit du Fer (Fig. 1.4.).

I-3-1 - Synoptique du THR

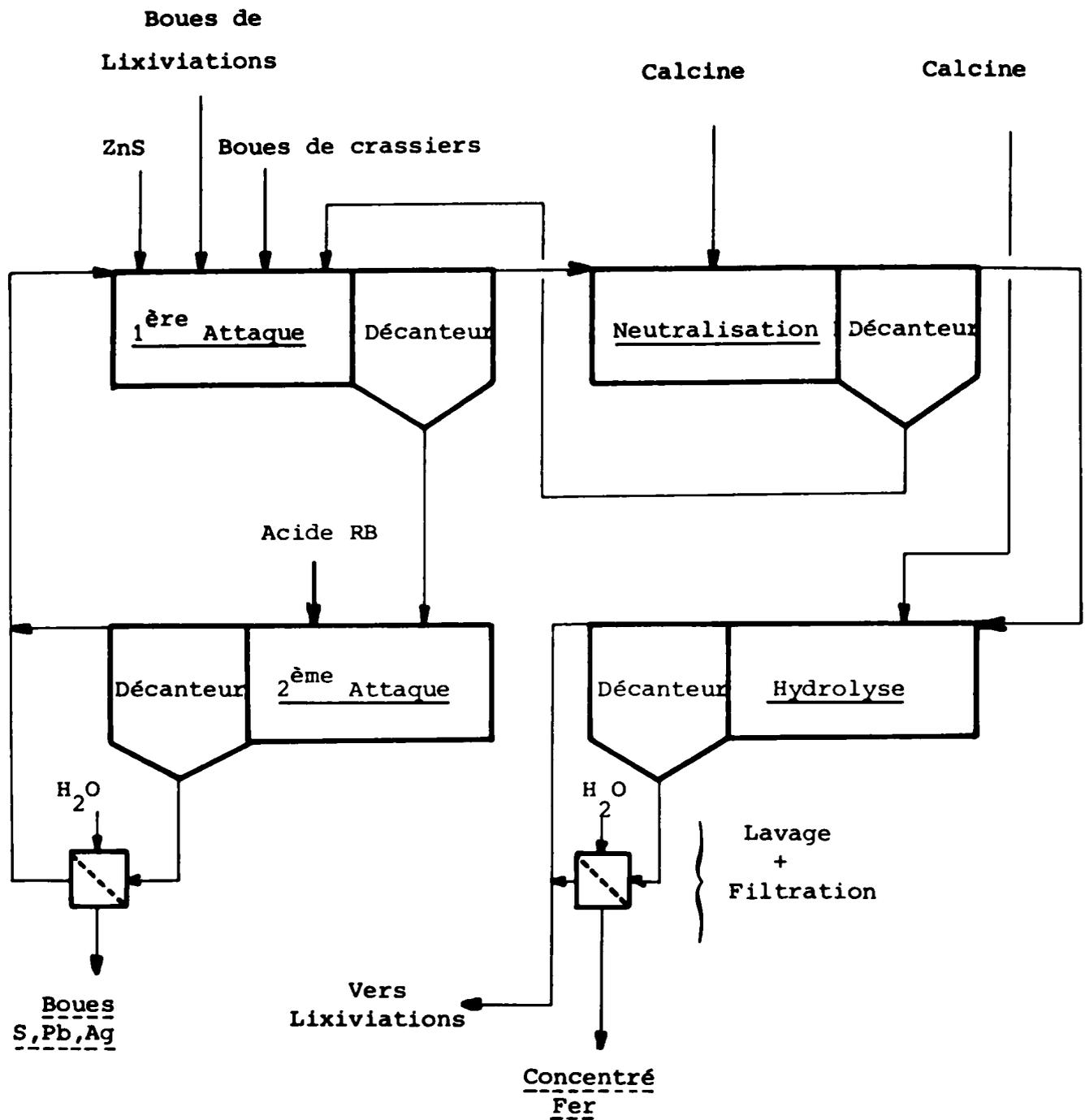


Fig. I.4. : Synoptique du THR

Les boues de Lixiviations subissent d'abord une première attaque à l'acide appauvri venant de 2e attaque, facilitée par la présence de concentrés Zinc (ZnS) et le Fer y est réduit à l'état de Fer 2 + ($Fe SO_4$). Une décantation suit, dont les boues sont soumises à une deuxième attaque à contre-courant, à l'acide RB.

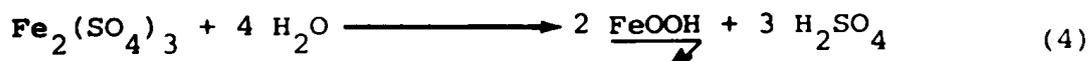
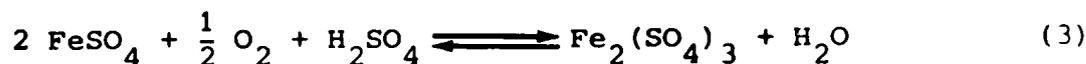
Après nouvelle décantation, le résidu insoluble constitue le

concentré Plomb, valorisé par ailleurs. Les attaques successives ont permis de récupérer le Zinc qui était contenu dans les Ferrites. Ce Zinc se retrouve donc dans la liqueur qui est recyclée en Mise en Solution Neutre après Neutralisation et Hydrolyse.

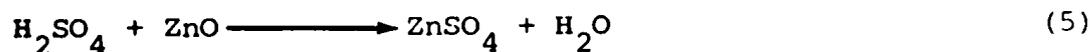
Le THR prend également en charge d'anciennes boues de Lixiviations stockées sous forme de crassiers.

I-3-2 - Hydrolyse

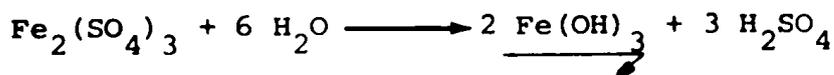
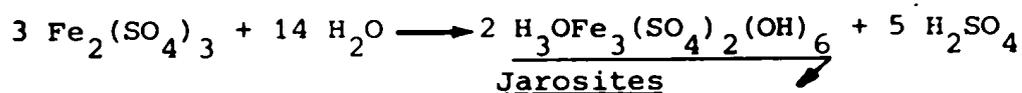
Le Fer en solution, présent sous forme de sulfates ferreux (Fe SO_4) est d'abord oxydé en sulfates ferriques ($\text{Fe}_2 (\text{SO}_4)_3$) (3) et au fur et à mesure, précipité en Goethite (Fe OOH) (4) :



L'acide libéré par la précipitation est neutralisé par apport de Calcine principalement :



Nous n'avons cité là que les réactions de base de l'Hydrolyse. D'autres réactions sont à éviter à tout prix :



Chacun des métaux en présence et plus particulièrement le Sodium (Na) et le Potassium (K), générateurs d'autres formes de Jarosites, vient perturber le bon fonctionnement de cette étape.

Il en est de même du Cuivre qui joue le rôle fondamental de catalyseur de la réaction d'oxydation et intervient dans la réaction de précipitation [12].

On trouvera en Annexe , un récapitulatif des réactions connues existant lors de l'Hydrolyse.

- Addition automatique de Calcine, chaque réacteur étant équipé d'une régulation à action PID sur le pH, le point de consigne étant fixé manuellement en fonction des contraintes et résultats de marche (fig. I.6). L'étalonnage des pH est fait manuellement deux fois par poste, (toutes les 4h).

- Contrôle de la concentration Fer dans chaque réacteur par dosage sur le chantier toutes les deux heures. Les points de consigne étant fixés de manière empirique en fonction des résultats de marche. (Fig. I.6).

- Echantillonnage manuel et analyse physico-chimique de la Calcine utilisée et de la Goethite obtenue.

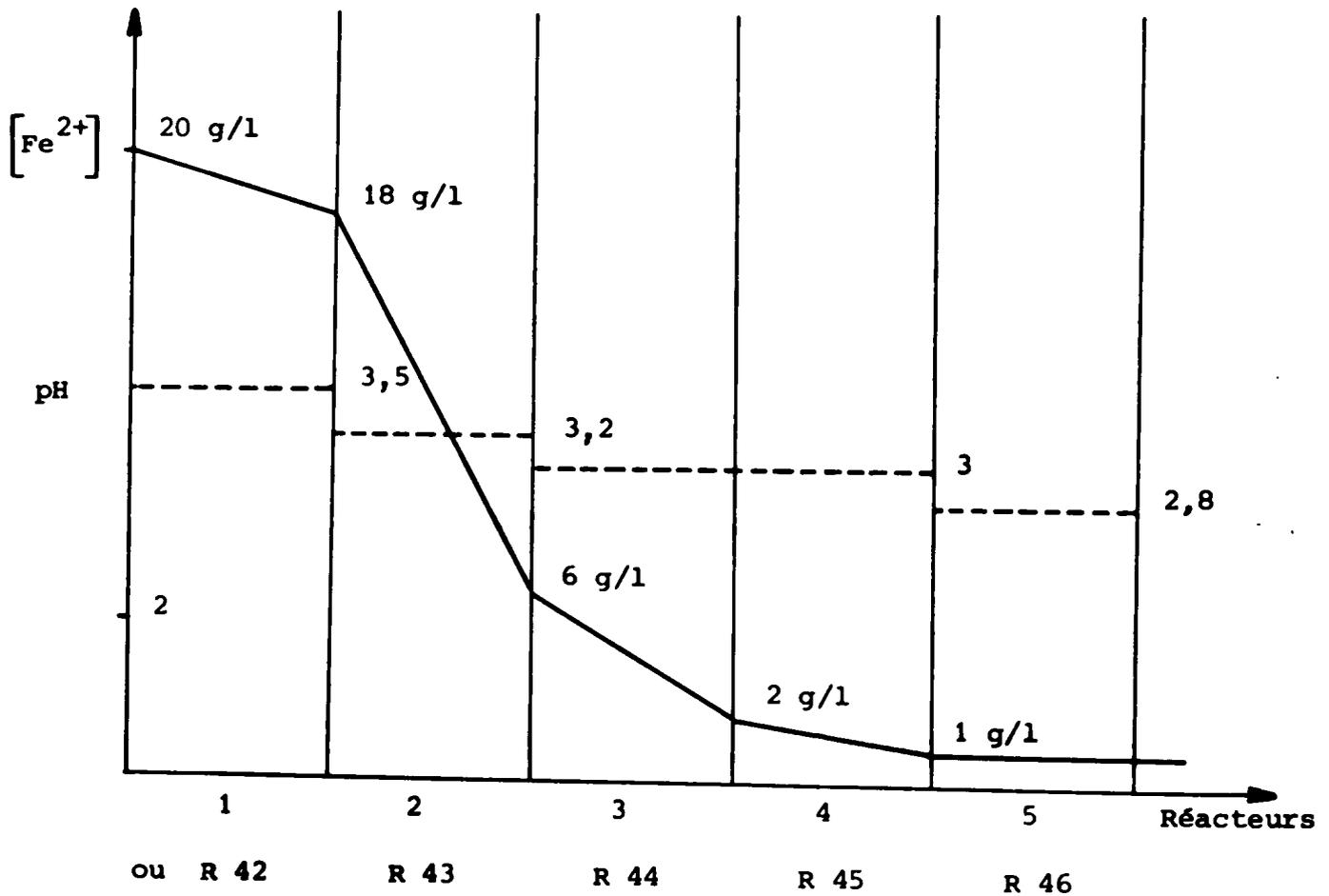


Fig. I.6 : Points de fonctionnement de chaque réacteur

en $[Fe^{2+}]$, pH .

I-4-2 - Contraintes et problèmes liés à l'Hydrolyse

Les conditions très dures de conduite de ce chantier, en particulier la présence simultanée de précipités et de liquides en solution acide (pH = 2 à 3) et chaude (90°C) rendent des mesures pourtant classiques de prime abord, très peu fiables, voire impossibles à réaliser. avec des moyens classiques.

Ce fut le cas principalement de la mesure de pH, très simple et rapide en milieux aqueux seul, qui a nécessité plus d'un an de recherches pour pouvoir obtenir un relevé fiable.

Pour des raisons similaires, les débit-mètres initiaux furent très rapidement colmatés par le précipité.

A l'heure actuelle, bon nombre de ces imperfections sont résolues.

I-4-3 - Améliorations apportées

La mesure du pH a été entièrement repensée et donne d'excellents résultats grâce à l'implantation d'un capteur effectuant une mesure séquentielle (toutes les 8 mm environ), après rinçage et étalonnage des électrodes. Auparavant la présence constante de précipité avec l'électrode formait une couche isolante faussant la mesure. Un tel système équipe depuis peu tous les réacteurs.

De même, un procédé de mesure séquentielle (de même période que pour le pH) de la concentration en Fer Ferreux (Fe^{2+}) de la liqueur est à l'essai sur un réacteur, et devrait équiper rapidement toute la chaîne.

A noter que ces deux procédés ont été entièrement conçus et réalisés par la Société VIEILLE-MONTAGNE.

I-4-4 - Problèmes instrumentaux posés par l'Hydrolyse

Nous avons vu que l'objectif du THR, hormis l'élimination du Fer, est aussi la récupération du Zinc entraîné dans les Ferrites.

Or ces deux objectifs ne sont pas toujours réalisés de façon optimale.

En effet, la précipitation du Fer nécessite une neutralisation par de la Calcine (5), ceci afin de rétablir le pH de la solution. D'où, injection dans le circuit de Calcine dont une partie est perdue, car n'ayant pas réagi (soit environ 4% du Précipité). De plus, la qualité du précipité obtenu est importante lors de la filtration : on récupère alors une partie du Zinc soluble entraîné par imprégnation (soit 3%). Enfin, les Ferrites contenues dans la Calcine d'Hydrolyse ne sont pas dissoutes et sont évacuées dans le précipité (soit 2%). D'autres causes de perte Zinc existent, mais seront négligées.

Nous venons de définir les trois origines principales des pertes Zinc dans l'Hydrolyse. Les deux premières étant directement liées au fonctionnement de l'Hydrolyse, nous ne retiendrons qu'elles dans la suite de l'étude, soit :

- Excès de Calcine,
- Teneur Zinc de la liqueur d'imprégnation.

La totalité de ces pertes, représentant environ 9% du précipité, se monte en fait à plus de 2000 T/an. nous voyons donc l'intérêt d'une conduite optimale de ce processus.

La minimisation de ces pertes passe par la maîtrise des deux types de pertes précédemment cités, qui sont en fait conflictuelles. En effet, la réduction des pertes par imprégnation, pour une surface de filtre et une quantité d'eau de lavage données, demande que le précipité ait une bonne perméabilité. Or, l'expérience montre qu'un léger excès de Calcine est un moyen d'obtention d'une bonne perméabilité.

Cependant, d'autres facteurs ont un effet sur ces pertes Zinc, en particulier :

- Le pH de la précipitation dans chaque réacteur,
- La vitesse de précipitation dans chaque réacteur.

A moindre titre, la concentration Fer Ferrique (Fe^{3+}) a une incidence sur le résultat, mais elle est liée au pH. Par contre, la concentration en Cuivre de la solution peut difficilement être ignorée. Le Cuivre, rappelons le, est un catalyseur de réaction d'oxydation.

I-4-5 - Objet de l'étude sur le THR

L'objectif principal est l'automatisation de l'étape Hydrolyse du THR.

Pour ce faire, l'étude nécessitera dans un premier temps, le développement d'une phase analyse qui s'avèrera plus délicate que prévu en raison des divers contre-temps décrits précédemment.

Ensuite, l'établissement d'un modèle de la précipitation du Fer d'une part, et d'un modèle représentatif de la qualité du Précipité d'autre part, permettront la définition de points de consigne optimaux.

Enfin, la partie Commande proprement dite ne pourra être abordée qu'une fois tous les moyens de suivi en ligne des variables significatives du processus opérationnels.

CONCLUSION

Après avoir décrit le fonctionnement du complexe de production de Zinc, et détaillé le sous-processus qui est le THR, nous constatons que nous avons affaire à un système complexe ayant une structure fortement interconnectée.

Cependant, le sous système Hydrolyse a quand même à lui une structure en cascade qui facilite l'étude et l'implantation d'une Commande.

L'objectif global est donc l'établissement d'une structure de commande permettant la précipitation totale du Fer sous une forme réalisant le meilleur compromis entre une bonne Filtration et un minimum de pertes Zinc.

Ce compromis est directement lié aux impératifs de la production par la limitation de la quantité d'eau de lavage disponible et par le "stock tampon" qu'est le décanteur.

A N N E X E

L'oxydation du Fer Ferreux en Fer Ferrique, sa précipitation et la neutralisation de l'acide ainsi libéré se faisant simultanément, nous pouvons contracter ces trois réactions en une seule :

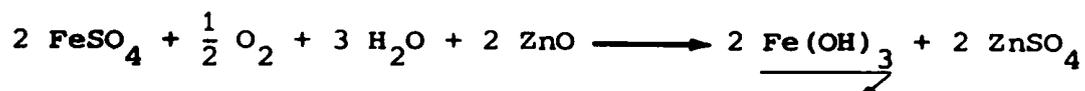
. Précipitation sous forme de Goethite



. Précipitation sous forme d'Hydroxo -Jarosites



. Précipitation sous forme d'Hydroxydes Ferriques

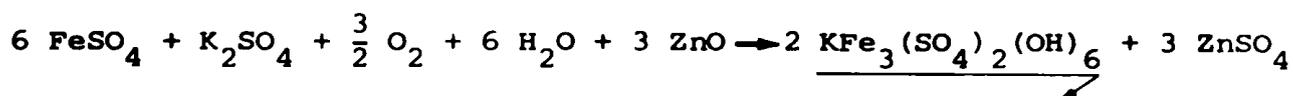


— Il existe de même suivant les métaux présents :

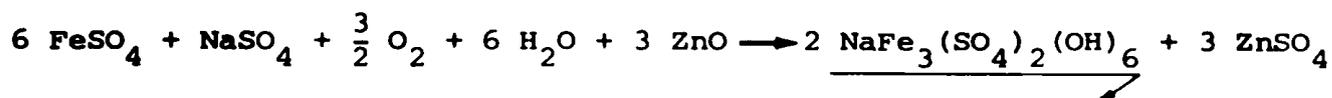
. Précipitation du Fer déjà présent sous forme de Fer ferrique (Fe^{3+}) en Goethite



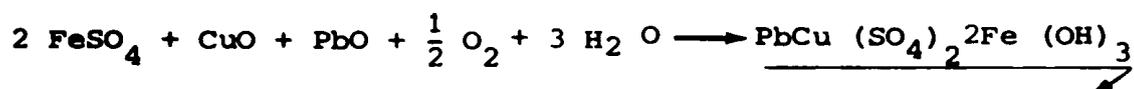
. Précipitation du Potassium sous forme de Jarosites de Potassium



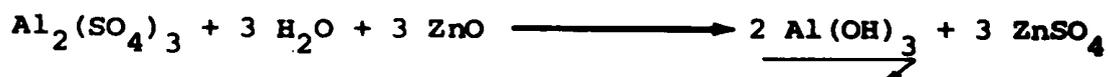
. Précipitation du Sodium sous forme de Jarosites de Sodium



. Précipitation des Cuivres et du Plomb



. Précipitation de l'Aluminium.



Bien sur, cette liste n'est pas limitative, et il existe certainement d'autres réactions se déroulant dans les bacs d'hydrolyse, mettant en jeu d'autres métaux, dont l'influence peut cependant être négligée.

Remarque: Le signe \longrightarrow sous certains constituants signifie qu'il s'agit de précipité.

C H A P I T R E I I

METHODOLOGIE D'ANALYSE DES INTERACTIONS DANS LES SYSTEMES COMPLEXES

INTRODUCTION

Bien que l'analyse des systèmes complexes soit devenue, depuis une décennie, une branche importante de l'Automatique, son application à des processus industriels ne va pas sans poser quelques problèmes.

Problèmes liés à la raison même d'être de l'analyse des systèmes complexes. En effet, l'étude de systèmes mono variables, dont l'objectif était une régulation ponctuelle ne prenant bien souvent en compte qu'un paramètre, a peu à peu laissé la place à des projets bien plus ambitieux d'étude globale des systèmes complexes.

Ce développement est dû principalement à la nécessité constante d'une meilleure maîtrise de ces systèmes (ex: systèmes de production) et à la diversité des objectifs à atteindre [5] , [17] , [18]
[23] , [32] , [34]

Une telle étude, que ce soit modélisation ou commande nécessite la considération de toutes les informations fournies par le système. Elles sont pour la plupart, contenues dans des données issues de relevés effectués sur site, en général.

Dans notre étude, la caractérisation de ces informations est effectuée au moyen de deux coefficients. L'un d'eux, le coefficient de corrélation est couramment utilisé dans toute analyse de données, mais présente cependant quelques inconvénients. C'est pour celà que nous lui adjoignons un coefficient de couplage défini à partir de la Théorie de l'Information qui s'avère plus complet [14] , [26] , [29] , bien que présentant quelques problèmes d'utilisation.

Soient X_i et X_j , deux variables pour lesquelles on dispose de n observations.

$$X_i = \begin{pmatrix} X_i^1 \\ \vdots \\ X_i^n \end{pmatrix}, \quad X_j = \begin{pmatrix} X_j^1 \\ \vdots \\ X_j^n \end{pmatrix}$$

On définit:

. Ecart - type des variables X_i, X_j :

$$\sigma_{X_i} = \sqrt{\sum_{k=1}^n p_k (X_i^k - \bar{X}_i)^2} \quad ; \quad \sigma_{X_j} = \sqrt{\sum_{k=1}^n p_k (X_j^k - \bar{X}_j)^2}$$

. \bar{X}_i (resp. \bar{X}_j) est la moyenne de la variable X_i (resp. X_j)

. p_k est une pondération de l'observation k telle que $\sum_{k=1}^n p_k = 1$
(en général $p_k = \frac{1}{n} \quad \forall k$)

Covariance des variables X_i et X_j :

$$\text{cov}(X_i, X_j) = \sum_{k=1}^n p_k (X_i^k - \bar{X}_i) (X_j^k - \bar{X}_j)$$

Le coefficient de corrélation a pour expression :

$$\text{cor}(X_i, X_j) = \frac{\text{cov}(X_i, X_j)}{\sigma_{X_i} \sigma_{X_j}}$$

On note $\text{cor}(X_i, X_j) = r_{ij}$

L'ensemble des coefficients entre deux variables d'un ensemble X de m variables définit la matrice des corrélations R :

$$R = \begin{bmatrix} 1 & - & r_{1i} & - & r_{1j} & - & r_{1m} \\ | & & | & & | & & | \\ r_{i1} & - & 1 & - & r_{ij} & - & r_{im} \\ | & & | & & | & & | \\ r_{j1} & - & r_{ji} & - & 1 & - & r_{jm} \\ | & & | & & | & & | \\ r_{m1} & - & r_{mi} & - & r_{mj} & - & 1 \end{bmatrix}$$

$$X = \{X_1, \dots, X_i, \dots, X_j, \dots, X_m\}$$

Remarques :

$$\forall i, j \quad -1 < r_{ij} < 1$$

$$r_{ij} = r_{ji}$$

$$r_{ij} = 1 \Leftrightarrow i=j \text{ ou les variables } X_i \text{ et } X_j \text{ sont liées par}$$

une relation linéaire.

$r_{ij} = 0 \Leftrightarrow$ Il n'y a pas de relation linéaire entre les variables X_i et X_j .

D'où la limitation de l'emploi du coefficient de corrélation à la recherche de relations exclusivement linéaires.

II-2 - CONCEPTS DE THEORIE DE L'INFORMATION

II-2-1 - Introduction

Les travaux de SHANNON [29] ont servi de point de départ à l'utilisation de la Théorie de l'Information pour la recherche de couplage entre les variables d'un système.

Son étude, étant avant tout axée sur les réseaux de télécommunication, peut se résumer de la manière suivante :

Soit X, un signal codé émis par une source. Ce signal, transmis au moyen d'une voie de transmission est détérioré par des phénomènes aléatoires (appelés bruit) et le récepteur reçoit alors un signal Y différent de X.

SHANNON a montré qu'il est possible de retrouver X à partir de Y et qu'il existe, pour X un codage optimal (relativement aux bruits). [28]

Il est possible de transposer cette approche à l'étude de couplage entre variables d'un système. En effet, si X et Y sont deux variables d'un système S : nous pouvons considérer X comme le message émis, Y comme le message reçu. Alors, le système S est la voie de transmission au cours de laquelle X est déformé. Les perturbations peuvent donc être les erreurs d'observation, ou bien l'influence d'autres variables, ou bien les deux à la fois.

De cette façon, il est possible de définir l'existence et l'intensité d'une relation entre variables à partir de la Théorie de l'Information. [1] , [2] , [8] , [14] , [19] , [26] . Relation matérialisée par le calcul de l'entropie de variables et de la transinformation entre variables.

La transinformation représente la quantité d'information contenue dans Y sur X en termes de probabilité.

II-2-2 - Entropie de SHANNON dans le cas discret

. Soit une variable aléatoire discrète X pouvant prendre n valeurs finies (x₁, ..., x_n) avec les probabilités respectives (p(x₁), ..., p(x_n)) satisfaisant les conditions:

$$p(x_i) \geq 0 \quad \forall i$$

$$\sum_{i=1}^n p(x_i) = 1$$

II-2-2-1 - Entropie d'une variable

L'entropie de la variable X est la quantité :

$$H(X) = - \sum_{i=1}^n p(x_i) \cdot \log_a p(x_i) \tag{1}$$

a est la base du logarithme utilisé. En général on adopte a = 2. C'est ce que nous faisons dans la suite du mémoire sans le mentionner.

Remarques : Si les probabilités sont telles que :

$$\star \quad p(x_j) = 1 \quad \text{alors} \quad p(x_i) = 0 \quad \forall i \neq j$$

$$\Rightarrow H(X) = 0$$

$$\star \quad p(x_i) = \frac{1}{n} \quad \forall i$$

$$\Rightarrow H(X) = \log n$$

Dans ces remarques, il est évident que l'entropie d'une variable peut être considérée comme une mesure de l'incertitude sur la réalisation de cette variable et que :

$$0 < H(X) < \log n$$

\
\

pas d'incertitude Incertitude maximum

II-2-2-2 - Entropie conjointe de deux variables

. Soit une variable aléatoire Y prenant m valeurs (y_1, \dots, y_m) avec les probabilités $(p(y_1), \dots, p(y_m))$

Le couple de variables aléatoires (X, Y) prend n x m valeurs $((x_1, y_1), \dots, (x_n, y_m))$ avec les probabilités $(p(x_1, y_1), \dots, p(x_n, y_m))$.

L'entropie du couple (X, Y) ou entropie conjointe de X et Y est définie par :

$$H(X, Y) = - \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m p(x_i, y_j) \cdot \log p(x_i, y_j) \quad (2)$$

II-2-2-3 - Entropie conditionnelle

Soient les probabilités suivantes :

- Probabilité de réalisation de x_i seul :

$$p(x_i) = \sum_{j=1}^m p(x_i, y_j)$$

- Probabilité de réalisation de y_j seul :

$$p(y_j) = \sum_{i=1}^n p(x_i, y_j)$$

- Probabilité de réalisation de x_i sachant que y_j s'est produit :

$$p(y_j/x_i) = \frac{p(x_i, y_j)}{p(y_j)}$$

- Probabilité de réalisation de y_j sachant que x_i s'est produit :

$$p(y_j/x_i) = \frac{p(x_i, y_j)}{p(x_i)}$$

. L'entropie conditionnelle de X sachant que y_j s'est produit est :

$$H(X/Y_j) = - \sum_{i=1}^n p(x_i/y_j) \cdot \log p(x_i/y_j)$$

. L'entropie conditionnelle de X sachant que Y s'est produit a pour expression :

$$\begin{aligned} H(X/Y) &= \sum_{j=1}^m p(y_j) \cdot H(X/Y_j) & (3) \\ &= - \sum_{j=1}^m p(y_j) \cdot \sum_{i=1}^n p(x_i/y_j) \cdot \log p(x_i/y_j) \\ &= - \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n p(y_j) \cdot p(x_i/y_j) \cdot \log p(x_i/y_j) \end{aligned}$$

De même on peut écrire l'entropie conditionnelle de Y sachant qu(X s'est produit :

$$H(Y/X) = - \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m p(x_i) \cdot p(y_j/x_i) \cdot \log p(y_j/x_i) \quad (4)$$

II-2-2-4 - Propriétés de l'entropie

Par combinaison de (1), (2), (3), (4) nous obtenons les relations suivantes, liant les entropies :

$$H(X, Y) = H(X) + H(Y/X) \quad (5)$$

$$= H(Y) + H(X/Y) \quad (6)$$

$$\Rightarrow H(X) + H(Y/X) = H(Y) + H(X/Y) \quad (7)$$

Remarques :

. Si X et Y sont statistiquement indépendantes :

$$p(x_i, y_j) = p(x_i) \cdot p(y_j)$$

$$p(x_i/y_j) = p(x_i) \quad ; \quad p(y_j/x_i) = p(y_j)$$

On en déduit d'après (3) et (4)

$$H(X/Y) = H(X)$$

$$H(Y/X) = H(Y)$$

Alors d'après (5)

$$H(X, Y) = H(X) + H(Y)$$

. Si Y est totalement dépendant de X :

$$H(Y/X) = 0 \text{ d'où } H(X, Y) = H(X)$$

De même X totalement dépendant de Y \rightarrow

$$H(X/Y) = 0 \text{ d'où } H(X, Y) = H(Y)$$

D'après ces deux remarques, nous voyons que :

$$\text{Max } (H(X), H(Y)) \leq H(X, Y) \leq H(X) + H(Y)$$

II-2-3 - Entropie dans le cas continu

Nous avons vu que l'entropie d'une variable aléatoire discrète X est :

$$H(X) = - \sum_{k=1}^n p(x_k) \cdot \log p(x_k)$$

avec $p(x_k) > 0 \quad \forall k$

$$\sum_{k=1}^n p(x_k) = 1$$

Dans le cas continu, la fonction densité de probabilité sur l'intervalle $[a, b]$ de la variable aléatoire X est définie par :

$$\rho(x) > 0 \quad \text{et} \quad \int_a^b \rho(x) dx = 1$$

L'entropie de la variable X est alors : [19] , [35]

$$H_c(X) = - \int_a^b \rho(x) \cdot \log \rho(x) dx \quad (8)$$

De même :

L'entropie conjointe de X et Y est :

$$H_c(X, Y) = - \int_a^b \int_c^d \rho(x, y) \cdot \log \rho(x, y) dx dy \quad (9)$$

où $\rho(x, y)$ est la densité de probabilité conjointe de X et Y

$$x \in [a, b] \quad \text{et} \quad y \in [c, d]$$

Remarque :

. La valeur maximale de l'entropie est obtenue lorsque la densité de probabilité est constante soit $\rho(x) = \frac{1}{b-a} (\forall x)$

$$\text{d'où } H_c(X) = \log(b - a)$$

On notera que cette valeur est différente de l'entropie maximale dans le cas discret.

. Les propriétés de l'entropie formulées au paragraphe II-2-2-4 restent valables dans le cas continu.

II-2-4 - Transinformation

II-2-4-1 - Définition

L'expression (7) peut être transformée comme suit :

$$H(X) - H(X/Y) = H(Y) - H(Y/X) \quad (10)$$

$H(X)$ étant l'information contenue dans X et $H(X/Y)$, l'information contenue dans X après réalisation de Y, alors :

$$T(X : Y) = H(X) - H(X/Y) \quad (11)$$

$$= H(Y) - H(Y/X) \quad (12)$$

est l'information contenue dans Y sur X, ou bien, ce qui revient au même, l'information contenue dans X sur Y, (12).

- On appelle $T(X : Y)$: transinformation entre X et Y.

$T (X : Y)$ peut aussi s'écrire à partir de l'entropie conjointe d'après (5) et (6).

$$T (X : Y) = H (X) + H (Y) - H (X, Y) \quad (13)$$

II-2-4-2 - Propriétés

. Si X et Y sont statistiquement indépendantes, nous savons que $H (X, Y) = H (X) + H (Y)$

Alors $T (X : Y) = 0$

. Si X dépend de Y ou l'inverse, nous savons que :

$$H (X, Y) = \text{Max} (H (X), H (Y))$$

De ces deux propriétés :

$$0 \leq T (X : Y) \leq \text{Min} (H (X), H (Y))$$

II-2-5 - Coefficient de couplage

Afin d'obtenir une expression de la transinformation facilement exploitable, on définit un coefficient de couplage normalisé :

$$m_1 (X : Y) = \frac{T (X : Y)}{\sqrt{H (X) \cdot H (Y)}} \quad [26]$$

On peut aussi prendre, suivant l'application que l'on veut en faire :

$$m_2 (X : Y) = \frac{T (X : Y)}{H (X)} \quad [8] , [14]$$

(ou $H (Y)$)

$$m_3 (X : Y) = \frac{T (X : Y)}{H (X, Y)} \quad [15]$$

Les différents coefficients vérifient tous :

$$0 < m (X : Y) < 1$$

On notera aussi $m(X : Y) = m_{ij}$

On définit ainsi la matrice de couplage statique M à partir de l'ensemble des coefficients de couplage entre deux variables d'un ensemble de q variables.

$$M = \begin{bmatrix} 1 & - & m_{1i} & - & m_{1j} & - & m_{1q} \\ \vdots & & \vdots & & \vdots & & \vdots \\ m_{i1} & - & 1 & - & m_{ij} & - & m_{iq} \\ \vdots & & \vdots & & \vdots & & \vdots \\ m_{j1} & - & m_{ji} & - & 1 & - & m_{jq} \\ \vdots & & \vdots & & \vdots & & \vdots \\ m_{q1} & - & m_{qi} & - & m_{qj} & - & 1 \end{bmatrix}$$

II-2-6 - Généralisation

Les concepts établis ci-dessus peuvent facilement être généralisés à un ensemble de variables. [7] , [8] , [14] , [26]

Soit S un système composé de q variables aléatoires discrètes ou discrétisées. (X_1, \dots, X_q)

X_1 prend n valeurs (x_{11}, \dots, x_{1n})
 \vdots
 X_q prend m valeurs (x_{q1}, \dots, x_{qm})

On notera $p(x_{1i}, x_{2j}, \dots, x_{ql})$ la probabilité de l'évènement :

" X_1 prend la valeur x_{1i} et X_2 la valeur x_{2j} etet X_q la valeur x_{ql} " .

On définit alors :

$$H(S) = H(X_1, \dots, X_q)$$

$$= - \sum_{i=1}^n \dots \sum_{l=1}^m p(x_{1i}, \dots, x_{ql}) \cdot \log p(x_{1i}, \dots, x_{ql})$$

On peut décomposer H (S) en une somme d'entropies conditionnelles :

$$H (X_1, \dots, X_q) = H (X_1) + H (X_2/X_1) + H (X_3/X_1X_2) + \dots + H (X_q/X_1X_2\dots X_{q-1})$$

La transinformation globale du système s'écrit :

$$\begin{aligned} T (S) &= T (X_1 : X_2 : \dots : X_q) \\ &= H (X_1) + H (X_2) + \dots + H (X_q) - H (X_1, X_2, \dots, X_q) \\ &= \sum_{i=1}^q H (X_i) - H (X_1, X_2, \dots, X_q) \end{aligned}$$

II-3 - PARTICULARITES LIEES AU CALCUL DU COEFFICIENT DE COUPLAGE

II-3-1 - Influence du nombre de classes

Le calcul de l'entropie de variables continues nécessite leur discrétisation en Nc classes.

L'expression de H (X) est alors :

$$H (X) = - \sum_{i=1}^{Nc} \frac{p (i)}{n} \cdot \log \frac{p (i)}{n} = \log n - \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{Nc} p (i) \cdot \log p (i)$$

p (i) étant le nombre d'occurrences de l'évènement "X appartient à la i^e classe".

Remarque :

$$0 \leq H (X) \leq \log Nc$$

1 - La valeur 0 est prise lorsque les n valeurs appartiennent à la même classe.

2 - La valeur $\log N_c$ est atteinte lorsque les n valeurs sont équiréparties dans toutes les classes.

II-3-2 - Recherche de relations à partir des distributions de probabilité

Notre principal objectif est la recherche de l'existence de relations entre variables, sans en déterminer a priori la forme exacte.

Lors de l'étude de systèmes industriels, les valeurs des variables d'entrée qui sont des résultats de mesures se répartissent généralement suivant des distributions normales, et parfois exponentielles ou poissoniennes. Par contre, bien que les valeurs des variables de sortie soient des résultats de mesures, leurs distributions ne sont connues ou facilement identifiables que sous certaines conditions. [30]

II-3-2-1 - Cas monodimensionnel

Soit X une variable aléatoire réelle continue de densité (ou distribution) de probabilité $d_1(x)$ et soit $Y = F(X)$ une variable aléatoire réelle, transformée de X par la fonction F , de densité de probabilité $d_2(y)$.

. Si F est inversible :

Alors dans le cas d'une fonction strictement croissante :
A toute variable aléatoire X telle que :

$$x < X < x + \Delta x$$

correspond une variable aléatoire Y telle que :

$$y < Y < y + \Delta y$$

Donc la probabilité de réalisation de chacun de ces deux évènements est la même :

$$p(x < X < x + \Delta x) = p(y < Y < y + \Delta y) \quad (1)$$

Or par définition :

$$d_1(x) = \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{P(x \leq X < x + \Delta x)}{\Delta x}$$

$$d_2(y) = \lim_{\Delta y \rightarrow 0} \frac{P(y \leq Y < y + \Delta y)}{\Delta y}$$

Nous pouvons écrire les probabilités approchées aux infimements petits d'ordre supérieur par rapport à Δx , Δy près :

$$P(x \leq X < x + \Delta x) \simeq d_1(x) \cdot \Delta x$$

$$P(y \leq Y < y + \Delta y) \simeq d_2(y) \cdot \Delta y$$

d'après (1) :

$$d_1(x) \cdot \Delta x \simeq d_2(y) \cdot \Delta y$$

$$d_2(y) \simeq \frac{\Delta x}{\Delta y} \cdot d_1(x) \quad (2)$$

Or on a écrit (2) pour Δx et $\Delta y \rightarrow 0$

$$\text{et} \quad \lim_{\Delta y \rightarrow 0} \frac{\Delta x}{\Delta y} = \frac{dx}{dy}$$

(2) est alors une égalité rigoureuse :

$$d_2(y) = \frac{dx}{dy} \cdot d_1(x)$$

La généralisation au cas de fonctions strictement monotones amène à la formulation suivante de la densité de probabilité de Y :

$$d_2(y) = \left| \frac{dx}{dy} \right| \cdot d_1(x) \quad (3)$$

Remarque :

. Si F est linéaire : $Y = aX + b$ $(a, b) \in \mathbb{R}^2$

$$\frac{dx}{dy} = \frac{1}{a}$$

$$(3) \rightarrow d_2(y) = \frac{1}{|a|} \cdot d_1(x)$$

La forme, ainsi que l'ordre de la distribution de probabilité de X sont conservés lors d'une transformation linéaire.

. Si F est monotone, non linéaire

$$\frac{dx}{dy} = \frac{1}{h(x)} \quad \text{avec} \quad h(x) = \frac{dy}{dx} = \left[\frac{dF(x)}{dx} \right]_x \neq \text{cte.}$$

$$(3) \quad d_2(y) = \left| \frac{1}{h(x)} \right| \cdot d_1(x)$$

La distribution de probabilité de X n'est plus conservée.

II-3-2-2 - Cas multidimensionnel

La généralisation est rapide :

Soit $\{X_1, \dots, X_n\}$, un ensemble de variables aléatoires réelles continues dont $d_1(x_1, \dots, x_n)$ est la densité de probabilité conjointe.

Soit $\{Y_1, \dots, Y_n\}$, un ensemble de variables aléatoires réelles continues dont $d_2(y_1, \dots, y_n)$ est la densité de probabilité conjointe, tel que $Y_i = F_i(X_1, \dots, X_n)$

$$(i = 1 \dots n)$$

Alors dans le cas de fonctions strictement croissantes et par analogie avec le cas monodimensionnel :

$$d_1(x_1, \dots, x_n) = \lim_{\text{Diam } \Delta S_1 \rightarrow 0} \frac{P \{x_1 \leq X_1 < x_1 + \Delta x_1, \dots, x_n \leq X_n < x_n + \Delta x_n\}}{\Delta S_1}$$

$$\text{idem } d_2(y_1, \dots, y_n)$$

$$\text{avec } \Delta S_1 = \Delta x_1 \cdot \Delta x_2 \cdot \dots \cdot \Delta x_n \quad \text{idem } \Delta S_2$$

$$\text{Diam. } \Delta S_1 = \sqrt{(\Delta x_1)^2 + (\Delta x_2)^2 + \dots + (\Delta x_n)^2} \quad \text{idem } \text{Diam. } \Delta S_2$$

L'égalité des probabilités est aussi respectée :

$$d_1(x_1, \dots, x_n) \cdot \Delta S_1 \cong d_2(y_1, \dots, y_n) \cdot \Delta S_2$$

La généralisation aux fonctions strictement monotones et le calcul de $\Delta S_1, \Delta S_2$ donne : [22]

$$\Delta S_1 \cong |I| \cdot \Delta S_2$$

Où I est le déterminant fonctionnel ou Jacobien de la transformation définie par les fonctions L_j telles que :

$$x_j = L_j(y_1, \dots, y_n) \quad j = 1 \text{ à } n$$

Comme précédemment, le passage aux limites entraîne l'égalité stricte :

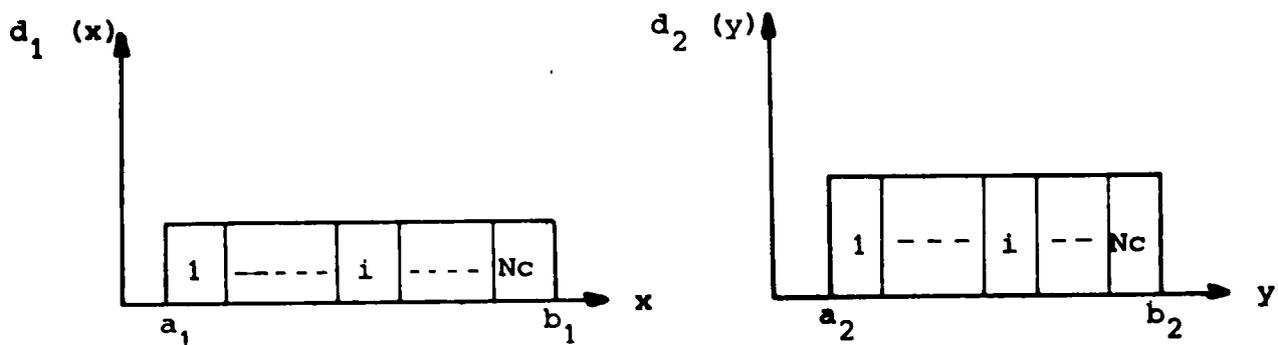
$$d_2(y_1, \dots, y_n) = |I| \cdot d_1(x_1, \dots, x_n)$$

Les remarques du cas monodimensionnel peuvent aussi être étendues au cas multidimensionnel.

II-3-2-3 - Conséquence

Nous avons vu que le calcul de la transformation entre variables aléatoires continues nécessite la subdivision de leurs intervalles respectifs de variation en un nombre fini de classes.

Ainsi, dans le cas particulier où deux variables aléatoires continues X et Y sont distribuées de façon uniforme, nous pouvons représenter leurs distributions de probabilité respectives $d_1(x)$ et $d_2(y)$ comme suit :



La discrétisation se fait en prenant N_c classes.

Ces deux variables discrétisées ayant des distributions de probabilité discrétisées de même forme, il existe une relation linéaire entre elles si et seulement si il existe une relation d'ordre liant leurs distributions.

Deux cas se présentent :

1 - Si à la $i^{\text{ème}}$ classe de X correspond la $i^{\text{ème}}$ classe Y.

Alors à la $(i + 1)^{\text{ème}}$ classe de X correspondant la $(i + 1)^{\text{ème}}$ classe de Y.

2 - Si à la $i^{\text{ème}}$ classe de X correspond la $(N_c + 1 - i)^{\text{ème}}$ classe de Y.

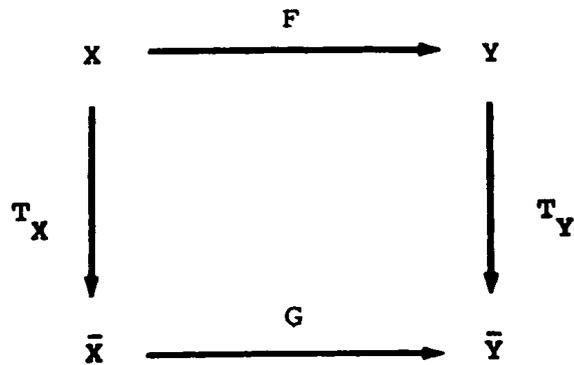
Alors à la $(i + 1)^{\text{ème}}$ classe de X correspond la $(N_c + 1 - (i + 1))^{\text{ème}}$ classe de Y.

* Une particularité des distributions uniformes est que lors d'une discrétisation en des classes de même longueur (intervalles équidistants) : la probabilité pour que la variable aléatoire appartienne à l'une de ces classes est la même quelle que soit la classe considérée : les intervalles sont équiprobables.

De plus, la discrétisation suivant des intervalles équiprobables amène au même résultat quelle que soit la distribution considérée, de forme connue ou non. C'est à dire une distribution uniforme discrétisée en intervalles équidistants (ou équiprobables).

Ainsi aux observations de chaque variable à étudier, nous appliquons une discrétisation équiprobable (Transformations biunivoques notées T_X, T_Y, \dots) obtenant de cette façon des variables (notées \bar{X}, \bar{Y}, \dots) qui ont des distributions de probabilité de même forme (en l'occurrence uniformes).

Soient donc deux variables aléatoires continues X et Y liées par une relation $F (R \longrightarrow R)$ telle que $Y = F (X)$. Après discrétisations, les deux variables aléatoires discrètes \bar{X} et \bar{Y} sont liées par une relation $G (R \longrightarrow R)$ telle que $\bar{Y} = G (\bar{X})$ comme le montre le schéma suivant :



Alors :

G est affine si et seulement si F est inversible ou constante.

Démonstration :

. G est affine :

$$\text{Alors } G (\bar{X}) = A \bar{X} + B \quad A, B \in R$$

si $A \neq 0 \rightarrow G$ est inversible

or $F = T_Y^{-1} \circ G \circ T_X$ donc F est inversible

si $A = 0 \rightarrow G$ est constante

$$\text{comme } F = T_Y^{-1} \circ G \circ T_X$$

$$F = T_Y^{-1} \circ \text{cte} = \text{constante}$$

. F est inversible

$$\text{Alors } G = T_Y \circ F \circ T_X^{-1} \quad \text{est inversible}$$

. F est constante

$$\text{comme } G = T_Y \circ F \circ T_X^{-1}$$

$$G = T_Y \circ \text{cte} = \text{constante}$$

Une conséquence directe de cette transformation est l'obtention d'un coefficient de couplage normalisé égal à 1 pour toute fonction strictement monotone. Dans les autres cas de fonctions nous obtenons des valeurs sensiblement supérieures à celles que l'on obtient sans transformation.

En effet, la transformation entre les variables transformées \bar{X} et \bar{Y} est donnée par :

$$T(\bar{X} : \bar{Y}) = H(\bar{X}) + H(\bar{Y}) - H(\bar{X}, \bar{Y})$$

Or :

- Les intervalles de discrétisation sont équiprobables et le nombre de classes est le même pour \bar{X} et \bar{Y} donc :

$$H(\bar{X}) = H(\bar{Y})$$

- F est monotone donc G est linéaire, alors \bar{Y} est entièrement expliquée par \bar{X} , donc :

$$H(\bar{X}, \bar{Y}) = H(\bar{X})$$

d'où :

$$T(\bar{X} : \bar{Y}) = H(\bar{Y}) \quad \text{ou} \quad H(\bar{X})$$

La normalisation de $T(\bar{X} : \bar{Y})$ par $H(\bar{X})$ ou $H(\bar{Y})$
ou $\sqrt{H(\bar{X}) \cdot H(\bar{Y})}$.

donne :

$$m(\bar{X} : \bar{Y}) = 1 \quad \text{pour toute fonction strictement monotone}$$

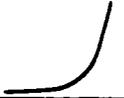
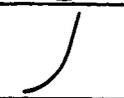
Le tableau N° II-1 reporte les valeurs du coefficient de couplage obtenues pour deux variables liées par différentes fonctions. A titre indicatif, les valeurs correspondantes du coefficient de corrélation sont indiquées. Le nombre d'observation est 110, pour un nombre de classes égal à 9.

* La valeur 1 du coefficient de couplage après transformation, pour des relations strictement décroissantes, n'est obtenue que si la biunivocité des transf. T_X et T_Y est respectée entre X et Y.

Nous avons une valeur différente de 1 lorsque le nombre de classes n'est pas un sous-multiple du nombre d'observations. Alors, la partition (ou discrétisation) n'est pas équiprobable (un intervalle n'a pas la même probabilité que les autres) et dans le cas de fonctions décroissantes l'ordre est inversé, rompant ainsi la linéarité de G.

Une première constatation est que le coefficient de couplage défini après transformation met en valeur de façon beaucoup plus nette les non-linéarités que le coefficient de corrélation.

Remarque : Il est clair que dans le cas de relevés industriels, les mesures étant bruitées, nous n'obtenons pas la valeur 1 du coefficient de couplage, même si la relation théorique entre les variables est connue comme étant inversible. De même que dans le cas linéaire la valeur 1 du coefficient de corrélation n'est pas obtenue, à partir de telles observations.

Fonctions	Coeff. de couplage après transform.	Coeff. de couplage sans transform.	Coeff. de corrélation	OBSERVATIONS					
				X		Y		Allure de courbe	
				Min	Max	Min	Max		
$\exp(x)$	1	0,41	0,32	-27	27	210^{-12}	810^{11}		
x^2	0,64	0,62	0,04	-27	27	0	756		
x^2	1	0,82	0,96	10^{-15}	51	10^{-30}	$2,610^3$		
$\log(x)$	1	0,36	0,49	10^{-15}	51	-34	4		
$1/x$	1 *	0,31	-0,15	10^{-15}	51	10^{15}	210^{-2}		
$\log(x) + \exp(x + 1)$	1	0,72	0,68	10^{-15}	10	610^4	-32		
$\log(x) + \exp(x)$	1	0,65	0,65	10^{-15}	11	610^4	-32		
$\log(x) + \exp(x - 10)$	1	0,58	0,5	10^{-15}	21	610^4	-32		
$\log(x) + \exp(x - 20)$	1	0,50	0,42	10^{-15}	31	610^4	-32		
$\log(x) + \exp(x - 30)$	1	0,46	0,37	10^{-15}	41	610^4	-32		
$\log(x) + \exp(x - 50)$	1	0,43	0,33	10^{-15}	51	610^4	-32		

Tab II-1 : Valeurs des coefficients de couplage et corrélation relatifs à certaines fonctions

II-4 - METHODE COMPARATIVE : CORRELATION - COUPLAGE

Le coefficient de corrélation a pour objectif la détection de relations linéaires entre variables. Le coefficient de couplage quant à lui permet de mettre en évidence des relations non linéaires strictement monotones, et à titre moindre d'autres formes de non-linéarités. Le coefficient de couplage est donc plus complet que le coefficient de corrélation, c'est ce qui nous a amenés à définir une méthode comparative basée sur l'utilisation simultanée de ces deux coefficients.

Ceci nous permet ainsi de trouver rapidement les relations entre variables et d'affirmer si elles sont linéaires ou non. Elle présente aussi un autre intérêt, découlant directement de la transformation précédemment citée :

Elle permet immédiatement la détection de mesures aberrantes.

. En effet, les informations données par le coefficient de corrélation étant par définition "incluses" dans celles fournies par le coefficient de couplage, une valeur élevée de r_{ij} et une faible valeur de m_{ij} sont incompatibles. Et comme le calcul de m_{ij} à partir d'intervalles équiprobables rend sa valeur insensible aux mesures aberrantes, nous pouvons affirmer que dans le cas où r_{ij} est fort et m_{ij} faible, il existe au moins une mesure aberrante qui influence le coefficient de corrélation.

La méthode est la suivante : [11]

A partir de seuils m_0, r_0 fixés respectivement sur les matrices de couplage et corrélation, soit à partir d'une première lecture, soit à partir de leur moyenne, nous établissons une matrice de comparaison (C), matrice triangulaire inférieure dont les termes c_{ij} sont repérés par 'R', 'T', '1' ou 'blanc' .

$\forall i < j :$

$\{R\}$ représente $\{c_{ij} : m_{ij} < m_0 \text{ et } r_{ij} > r_0\}$

$\{T\}$ représente $\{c_{ij} : m_{ij} > m_0 \text{ et } r_{ij} \approx r_0\}$

$\{1\}$ représente $\{c_{ij} : m_{ij} \approx m_0 \text{ et } r_{ij} > r_0\}$

$\{\text{blanc}\}$ représente $\{c_{ij} : m_{ij} < m_0 \text{ et } r_{ij} < r_0\}$

$\forall i=j : c_{ij} = 1$

Connaissant cette matrice, le tracé des nuages de points n'est plus nécessaire, car il devient très rapidement fastidieux lorsque le nombre de variables augmente.

Ainsi :

• Les points notés '1' nous indiquent qu'il existe une relation entre les variables correspondantes dont une bonne représentation est une fonction linéaire (fig. II-1).

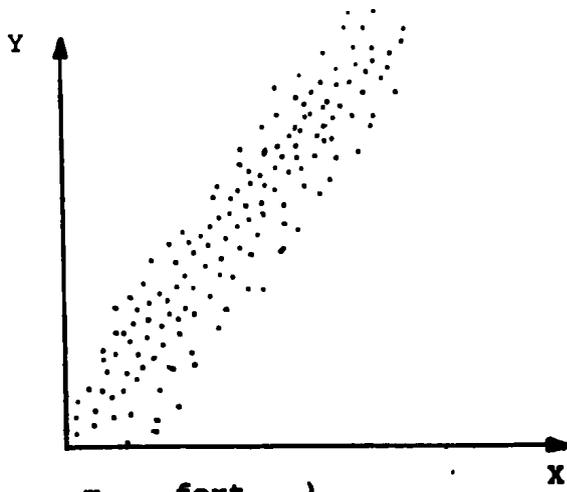
• Les points notés 'T' montrent qu'il existe une relation entre les variables dont une représentation est une fonction non linéaire.

Cette fonction peut parfois être formulée à partir de la connaissance physique du processus. (Fig. II-2).

• Les points notés 'R' indiquent qu'il existe des observations aberrantes orientant la droite de régression. (Fig. II-3).

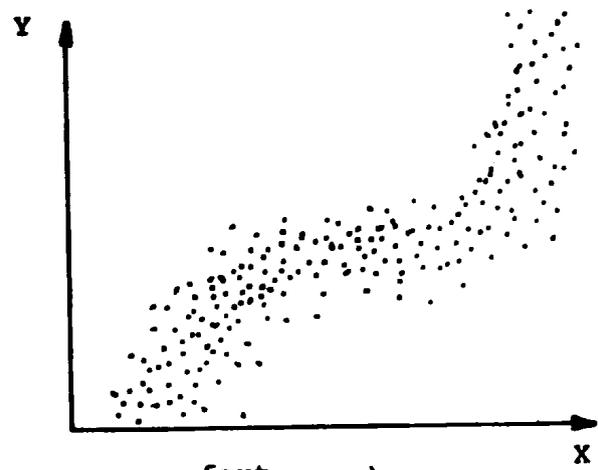
[6] , [16].

• Les 'blanc' montrent qu'il n'y a pas de relation significative entre les variables. (Fig. II-4).



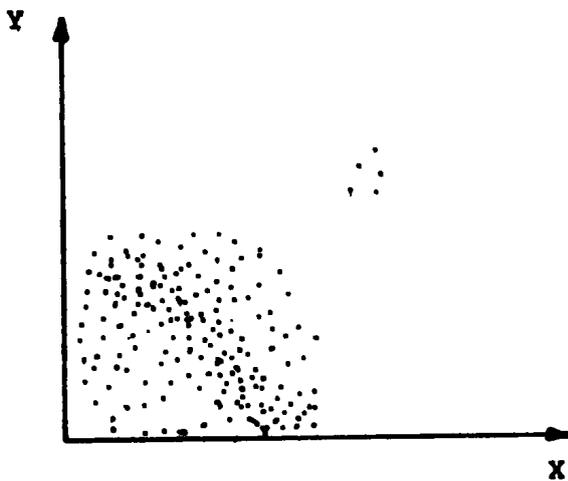
m_{XY} fort
 r_{XY} fort } $\Rightarrow 1$

Fig. II-1



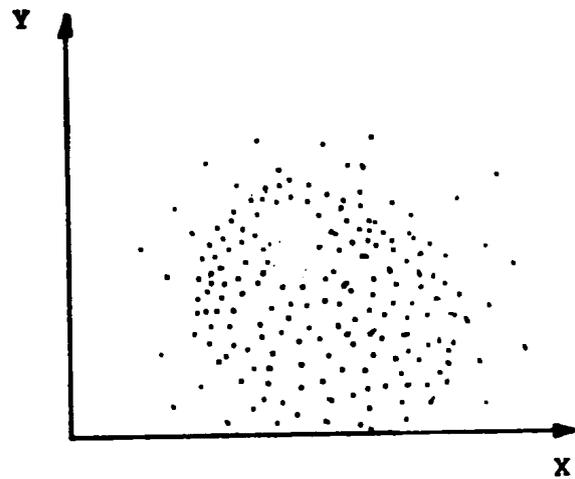
m_{XY} fort
 r_{XY} faible } $\Rightarrow T$

Fig. II-2



m_{XY} faible
 r_{XY} fort } $\Rightarrow R$

Fig. II-3



m_{XY} faible
 r_{XY} faible } \Rightarrow blanc

Fig. II-4

Le tableau II-2 représente la 1ère colonne de la matrice C obtenue à partir des fonctions caractéristiques définies au paragraphe précédent, pour des valeurs respectives de m_0 et r_0 égales à 0,8 et 0,6.

Remarques : Dans le cas où les variables sont distribuées de façon normale, il est facile de déterminer l'existence de mesures aberrantes et de les corriger par une procédure de troncature - repliement utilisée par DUFOUR [14] . Mais cette procédure n'est applicable que si l'on est certain de la normalité de la distribution, sinon elle risque de supprimer des observations valides.

<u>Fonctions</u>	c_{ij}	<u>Observations</u>
x	1	$x \in \mathbb{R}$
Exp (x)	T	"
x^2	blanc	$x \in \mathbb{R}$
x^2	1	$x \in \mathbb{R}^+$
Log (x)	T	"
1 / x	T	"
Log (x) + exp (x+1)	1	"
Log (x) + exp (x)	1	"
Log (x) + exp (x-10)	T	"
Log (x) + exp (x-20)	T	"
Log (x) + exp (x-30)	T	"
Log (x) + exp (x-50)	T	$x \in \mathbb{R}^+$

Tab. II-2 - Valeurs de C_{ij} obtenues pour certaines

Fonctions caractéristiques

CONCLUSION

Pour être appliquées sans difficulté , les méthodes statistiques d'analyse de données nécessitent d'abord un grand nombre d'observations, ensuite, la connaissance de variables significatives et, plus particulièrement lors de la recherche de modèles : la forme des relations entre ces variables.

Malheureusement, lors de l'étude de systèmes industriels, l'obtention d'un grand nombre de mesures n'est pas toujours réalisable, de plus les variables explicatives ne sont pas forcément définies de façon précise . Quant à la forme des relations, elle est souvent totalement inconnue.

En cela, la méthode comparative permet immédiatement :

- de définir les variables explicatives,
 - de savoir si les relations existant sont linéaires
- ou non,
- de détecter des mesures aberrantes.

Nous verrons dans le prochain chapitre comment cette méthode a été adaptée à l'étude de l'Hydrolyse.

CHAPITRE III

APPLICATION AU

TRAITEMENT HUMIDE DES RESIDUS

INTRODUCTION

Une première approche analytique de ce sous-processus qu'est l'Hydrolyse du THR ayant échoué (complexité et manque de connaissance du processus), nous nous sommes orientés vers une analyse statistique des données. Mais l'étude de processus industriels fonctionnant à feu continu et tels qu'il existe de nombreux et importants rebouclages, entraîne :

- l'analyse a priori d'un grand nombre de variables. Une sélection étant effectuée par la suite pour une étude plus fine.

- l'analyse de relevés effectués sur site, dont les variations restent faibles autour de points de fonctionnement. De trop grandes variations provoquent des perturbations inadmissibles pour une bonne conduite de l'ensemble du processus.

- dans le cas particulier de processus physico-chimiques, un nombre d'observations relativement limité. Certains relevés nécessitant une chaîne d'opérations manuelles (prélèvement - filtration - échantillonnage - analyse dans le cas de l'Hydrolyse) ne sont obtenus que plusieurs mois après.

De telles données ainsi recueillies ne sont pas toujours utilisables sur leur forme brute. Nous verrons comment une procédure d'ajustement permet de corriger les erreurs de mesure.

Un modèle statistique du fonctionnement de chaque réacteur est proposé, estimant le niveau Fer à la sortie.

La procédure de sélection des variables est appliquée pour la recherche d'un modèle de la quantité de Zinc dans le précipité. Une formulation des pertes Zinc, puis de la Filtration est ensuite proposée, à partir de laquelle nous pouvons déjà tirer un certain nombre de conclusions concernant le fonctionnement de l'Hydrolyse.

III-1 - AJUSTEMENT DE DONNEES

III-1-1 - Campagne de mesures

La définition, puis la mise en oeuvre d'une campagne de mesures est un point fondamental d'analyse de données. Elle doit être en accord avec les objectifs à atteindre et l'on se doit de répondre, auparavant, à certaines questions. En particulier :

- Type d'étude choisie ? Qualitative ou quantitative ?
- Paramètres à prendre en compte ? Elimination des redondances.
- Compatibilité des relevés ?
- Vérification possible de la validité de l'ensemble des mesures ?

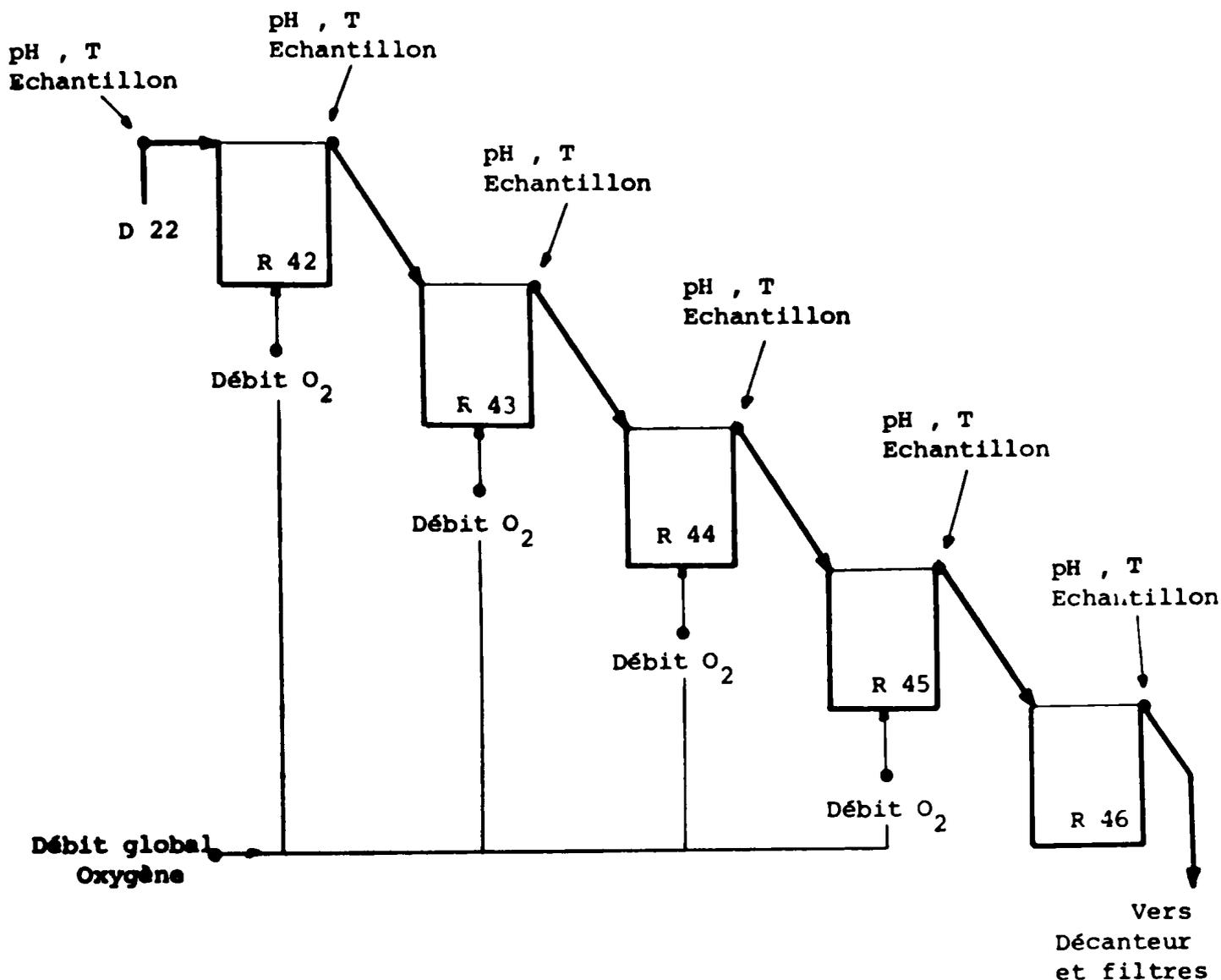
Ces contraintes ont d'autant plus d'importance que les relevés sont longs et coûteux à obtenir comme c'est le cas dans notre étude.

Ainsi nous avons dû laisser de côté une série de mesures à régime stabilisé étalée sur 3 mois parce que certains paramètres n'avaient pas été pris en compte. Malgré cela, le déroulement même de cette première campagne a permis de régler des difficultés pratiques de prises d'échantillons qui ne seraient pas apparues autrement. De plus, une étude même peu poussée a favorisé la définition d'une seconde campagne, par une première sélection de variables.

Cette nouvelle campagne s'est étalée sur 1 semaine (≈ 60 observations) avec des relevés périodiques par réacteur effectués en harmonie avec le temps de séjour de la pulpe* (soit environ 1 h 30 mn). Temps au bout duquel nous avons supposé que le système est stabilisé. Différents points de fonctionnement ont ainsi été testés au rythme de un par jour environ.

Les différents points de mesure ainsi que les notations utilisées par la suite sont repéré sur la fig. III-1.

* : Pulpe : Liqueur + précipité.



D22 : Décanteur N° 22 (Alimentation de l'Hydrolyse)

R42 R46 : Réacteur N° 42 à 46 de l'Hydrolyse

● Point de mesure et (ou) de prise d'échantillon.

Fig. III-1 : Emplacement des points de mesure

A la sortie de chacun des réacteurs, un échantillon de pulpe (liqueur + précipité) est prélevé. Après séparation de la liqueur

et du précipité, on effectue les analyses suivantes en Laboratoire :

$[\text{Fe}^{2+}]$, $[\text{Fe}^{3+}]$, $[\text{Cu}]$ (en g/l).
- Sur liqueur : concentration Fe^{++} , Fe^{+++} , Cu notées

- Sur précipité : poids sec (g/l), teneurs Fe, Zn (total), Cu, Zn (soluble eau), S.

- Mesure du temps de filtration de la pulpe à la sortie du réacteur 46 (en mn).

A noter que la totalité de ces informations, compte tenu de la charge des divers Laboratoires et du stock important d'échantillons n'est obtenue qu'au bout de 4 mois environ.

Les mesures de pH et Température sont effectuées directement sur chantier ainsi qu'une mesure de débit de solution à l'entrée, du débit global d'Oxygène. Le débit Oxygène par réacteur est déduit du débit global par différence.

Nous connaissons de plus les teneurs en Fer et Cuivre de la Calcine rajoutée, mais non son débit.

III-1-2 - Ajustement de données

Après de telles manipulations, les données obtenues sont entachées d'erreurs et même si ce n'est pas le cas il est toujours utile de vérifier leur cohérence lorsque c'est possible.

Une méthode pratique consiste en l'établissement de bilans (bilans massiques en général). [31]

III-1-2-1 - Méthode

De façon générale, un bilan massique peut être écrit sous la forme :

$$M \cdot X = 0$$

(1)

Où M : Matrice (n x p), représente la circulation des produits.

X : Vecteur (p), représente les produits.

Or l'existence d'erreurs dans les mesures fait que X (Valeur exacte) peut s'écrire :

$$X = Y + x$$

Y : Valeur mesurée , x : Erreur (ou correction)

Alors (1) devient :

$$M Y + M x = 0 \tag{2}$$

On suppose les erreurs de mesure sur les Y_i indépendantes et normalement distribuées, de variance σ_i^2 .

Un ajustement possible est la recherche des valeurs x_i telles que :

$$\sum_{i=1}^p \left(\frac{x_i}{\sigma_i} \right)^2 \text{ soit minimum .}$$

En posant :

$$P = \begin{bmatrix} \sigma_1^2 & & & \\ & 0 & & \\ & & \ddots & \\ & 0 & & \sigma_p^2 \end{bmatrix} \quad \text{Matrice de variance}$$

Le problème devient alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Min } J = x^T P^{-1} x \\ x \\ \text{sous } M Y + M x = 0 \end{array} \right.$$

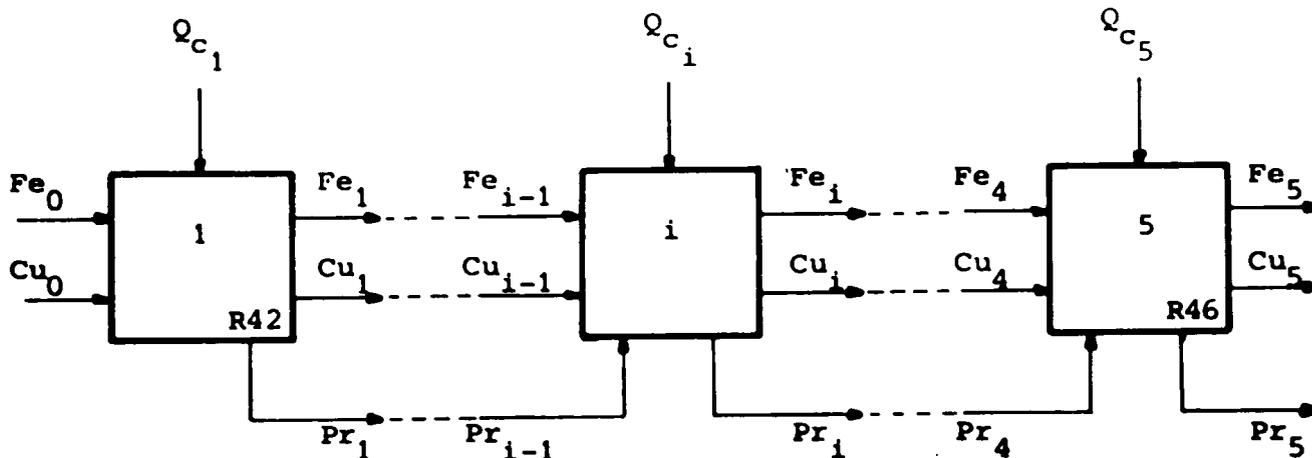
dont la solution est :

$$x = -PM^T (MPM^T)^{-1} MY$$

III-1-2-2 - Application à l'Hydrolyse

Bien que l'ajustement ne puisse être effectué que sur les variables $[Fe^{2+}]$, $[Fe^{3+}]$, $[Cu]$ qui seules permettent l'écriture d'un bilan massique, l'objectif est surtout l'obtention d'une valeur moyenne de débit. Celui-ci fluctue de façon très sensible entre deux relevés et, de plus nous l'avons signalé, sa mesure n'est pas fiable.

L'Hydrolyse peut être représentée suivant le schéma :



Notations :

Fe_i = Débits massiques de Fer dissous (Fe^{2+} et Fe^{3+}) (Kg/h) $i = 0 \text{ \& } 5$

Cu_i = " " " Cuivre dissous (Kg/h) $i = 0 \text{ \& } 5$

Pr_i = " " " Matières solides (Kg/h) $i = 1 \text{ \& } 5$

Dont on connaît :

Cu_{P_i} = Teneur en Cuivre du précipité

Fe_{P_i} = " " Fer " "

Q_{c_i} = Débits massiques de Calcine (Kg/h) $i = 1 \text{ \& } 5$

Dont on connaît :

Cu_c = Teneur en Cuivre de la Calcine

Fe_c = Teneur en Fer de la Calcine

Seuls les débits Calcine (Q_{c_i}) ne sont pas connus. Cependant nous pouvons nous en affranchir en faisant à la fois les bilans Fer et Cuivre.

En effet :

Si les mesures sont justes, les égalités suivantes sont vérifiées :

Pour le réacteur i ($i \neq 1$) :

- Bilan Fer :

$$\underbrace{Fe_i - Fe_{i-1}}_{\substack{\text{Différence de} \\ \text{débit Fer sol.entré} \\ \text{débit Fer sol.sorti}}} + \underbrace{Fe_c \cdot Q_{c_i}}_{\substack{\text{Débit Fer} \\ \text{apporté par la Calcine}}} + \underbrace{Fe_{P_{i-1}} \cdot Pr_{i-1}}_{\substack{\text{Débit Fer} \\ \text{apporté par le} \\ \text{précipité précé-} \\ \text{dent}}} = \underbrace{Fe_{P_i} \cdot Pr_i}_{\substack{\text{Débit Fer} \\ \text{du Précipité}}} \quad (3)$$

- Bilan Cuivre :

La même égalité peut être écrite :

$$Cu_i - Cu_{i-1} + Cu_c \cdot Q_{c_i} + Fe_{P_{i-1}} \cdot Pr_{i-1} = Fe_{P_i} \cdot Pr_i \quad (4)$$

Si $i = 1$: on pose $Pr_0 = 0$

L'élimination de Q_{c_i} entre (3) et (4) donne :

$$\left[Fe_{P_i} \cdot Pr_i - Fe_{P_{i-1}} \cdot Pr_{i-1} - (Fe_i - Fe_{i-1}) \right] / Fe_c = \left[Cu_{P_i} \cdot Pr_i - Cu_{P_{i-1}} \cdot Pr_{i-1} - (Cu_i - Cu_{i-1}) \right] / Cu_c$$

soit, en posant $\Delta Fe = Fe_i - Fe_{i-1}$ et $\Delta Cu = Cu_i - Cu_{i-1}$

(5) peut alors être écrite sous la forme condensée

$$M \cdot X = 0 \quad \begin{array}{l} M : \text{Matrice } (5 \times 17) \\ X : \text{Vecteur } (17) \end{array}$$

$$\text{Avec : } X^T = \left[Fe^T \quad Cu^T \quad pr^T \right]$$

$$\text{où } Fe^T = \left[Fe_0 \dots\dots Fe_5 \right]$$

$$Cu^T = \left[Cu_0 \dots\dots Cu_5 \right]$$

$$Pr^T = \left[Pr_1 \dots\dots Pr_5 \right]$$

L'erreur relative effectuée sur la mesure du débit Hydrolyse étant bien supérieure à l'erreur relative faite sur la mesure des concentrations, (Mesure chantier par rapport à une mesure labo), nous supposons que l'erreur commise sur les débits massiques est principalement due à une mauvaise estimation du débit Hydrolyse. (Annexe 1).

$$\text{Nous posons donc : } X = Y + x$$

Y valeur mesurée, x correction.

La résolution du problème d'optimisation défini ci-dessus, nous donne les nouveaux débits massiques X_j de Précipité, de Cuivre, de Fer. De là, supposant dans un premier temps les concentrations en Cuivre, Fer et le Poids sec de précipité exactes, nous obtenons pour chaque réacteur de nouveaux débits de pulpe :

$$i = 1 \text{ à } 5$$

D_{i_1} issu du précipité

D_{i_2} issu du Fer

D_1 issu du Cuivre
3

Or :

D'une part ces trois débits doivent être égaux, puisque correspondant au même réacteur i d'où :

On notera $DG_i = \frac{1}{3} \sum_{k=1}^3 D_{ik}$, le débit global moyen de pulpe du réacteur i.

D'autre part, les DG_i doivent être sensiblement les mêmes dans la chaîne, soit D cette valeur.

Les nouvelles valeurs C_j de concentration et poids sec vérifiant le bilan massique, pour un débit de pulpe D sont donc :

$$\left[C_j \right] = \frac{X_j}{D} \quad j = 1 \text{ à } 17$$

III-1-2-3 - Interprétation

Pour chaque observation, les débits calculés tout au long de la chaîne doivent être sensiblement égaux à D : cette affirmation n'est pas rigoureusement exacte, car à chaque réacteur un débit de Calcine est rajouté. Mais il est négligeable devant les $120 \text{ m}^3/\text{h}$ de débit pulpe. De plus, sur le réacteur 43, un petit débit variable de "boues de neutralisation" est lui aussi rajouté, mais peut de même être négligé devant le débit de pulpe.

Cependant, afin de ne pas ignorer totalement l'influence de ces débits, nous acceptons sur la chaîne des fluctuations de débit ne dépassant pas 10%.

Dans l'ensemble, nous avons constaté que les valeurs calculées C_j de concentration sont assez proches des mesures. Seul le débit a été sensiblement modifié, tout particulièrement lors d'interruptions de ce débit suffisamment longues pour décaler de façon notable le point

de fonctionnement. Ainsi les fluctuations supérieures à 10% entraînent l'élimination de l'observation correspondante pour la suite de l'étude.

Cet ajustement nous a permis de retrouver des anomalies de fonctionnement n'apparaissant pas clairement au vu des relevés. Et, bien qu'il ne soit pas possible de contrôler tous les relevés (pH, T par exemple) l'analyse des résultats de l'ajustement est un apport important en ce qui concerne la fiabilité des mesures.

C'est donc à partir de ces données ajustées que nous procédons pour établir les divers modèles de fonctionnement de l'Hydrolyse.

III-2 - MODELISATION

III-2-1 - Précipitation du Fer

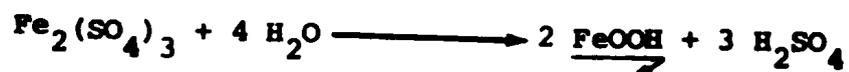
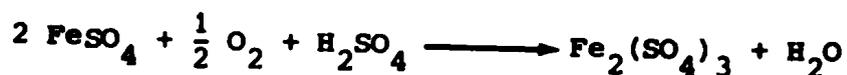
III-2-1-1 - Approche analytique

L'objectif du THR en général, et de l'Hydrolyse en particulier est, rappelons le :

- la récupération du Zinc amené par les Ferrites (dissoutes lors des attaques successives en amont de l'Hydrolyse),
- l'élimination du Fer.

Nous ne nous intéressons dans cette première partie qu'au problème de mise hors circuit du Fer.

Dans les conditions opératoires actuelles, la précipitation du Fer correspond aux équations chimiques suivantes :



Notations :

$\left(\left[\text{Fe}^{2+} \right] + \left[\text{Fe}^{3+} \right] \right)_E$, $[\text{Fe}]_S$: Concentration Fer total à l'entrée et à la sortie du réacteur (Kg/m^3).

D : Débit global de pulpe (m^3/h).

η_{O_2} : Rendement Oxygène.

α : Rapport théorique Masse de Fer/Vol. d'Oxygène.

Q_{O_2} : Débit Oxygène (m^3/h).

Nous affectons par la suite, l'indice E (resp. S) à toute variable d'entrée (resp. de sortie) du réacteur étudié. Si tous les réacteurs sont considérés, nous prenons comme indice le numéro de chaque réacteur (22 à 46).

L'expression de la quantité Fer précipitée est, pour chacun des réacteurs de la forme :

$$\left([\text{Fe}]_E - [\text{Fe}]_S \right) \cdot D = \alpha \cdot Q_{\text{O}_2} \cdot \eta_{\text{O}_2} \quad (1)$$

$$\text{Soit } [\text{Fe}]_S = [\text{Fe}]_E - \alpha \frac{Q_{\text{O}_2}}{D} \cdot \eta_{\text{O}_2} \quad (2)$$

Seul le rendement Oxygène nous est inconnu. Par contre nous savons qu'il est fonction, entre autres, des variables :

pH : Entrée et sortie du réacteur

T : Température du réacteur

$[\text{Fe}^{2+}]_E$: Concentration en Fer ferreux de la solution à l'entrée.

$[\text{Fe}^{3+}]_E$: Concentration en Fer ferrique de la solution à l'entrée.

$\Delta Fe = [Fe]_E - [Fe]_S$: Quantité de Fer précipitée

$[Cu]_E$: Concentration en Cuivre de la solution à l'entrée.

selon une forme, elle aussi inconnue.

De plus, compte tenu des conditions opératoires, nous faisons l'hypothèse suivante :

Pour chaque réacteur, la concentration en Fe^{3+} est constante et petite devant la concentration en Fe^{2+} , c'est à dire que tout le Fer oxydé est précipité et que la solution d'entrée est pauvre en Fe^{3+} .

Ceci, nous permet pour une première étude de ne pas considérer la variable $[Fe^{3+}]_E$.

III-2-1-2 - Approche statistique

Pour la détermination des paramètres de l'équation (2), nous pouvons écrire :

$$[Fe^{2+}]_S = [Fe^{2+}]_E + \frac{1}{Z} f(X) \quad (3)$$

$$\text{où } Z = \frac{D}{QO_2}, \quad X^T = \left[\Delta F_E, pH_E, pH_S, T, [Fe^{2+}]_E, [Cu]_E \right]$$

L'expression de $f(X)$ n'étant pas connue, nous la supposons d'une forme additive du type:

$$f(X) = \sum_{i=0}^5 a_i X_i$$

(3) devient alors :

$$[Fe^{2+}]_S = [Fe^{2+}]_E + \frac{1}{Z} \sum_{i=0}^5 a_i X_i$$

Or X contient le terme $[Fe^{2+}]_S$ qu'il faut éliminer du second membre :

$$[Fe^{2+}]_S = [Fe^{2+}]_E + \frac{1}{a_0 + Z} \sum_{i=1}^5 a_i X_i$$

que nous mettons sous la forme :

$$\left[\text{Fe}^{2+} \right]_S = \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E + \frac{1}{1 + b_0 z} \sum_{i=1}^5 b_i X_i \quad (4)$$

avec $b_0 = 1/a_0$, $b_i = a_i / a_0$

Cette formulation est non linéaire en b_0 et linéaire en b_i . L'estimation de ces paramètres est faite en minimisant un critère du type moindres carrés entre la valeur observée et la valeur calculée de concentration Fer Ferreux à la sortie du réacteur.

Le paramètre b_0 est déterminé à partir d'une méthode type gradient et pour chaque valeur obtenue nous pouvons calculer les b_i par régression linéaire.

A remarquer que l'étape initiale est définie par $b_0 = 0$, ce qui permet au premier pas d'estimer les paramètres sans tenir compte de la variable $z = \frac{D}{QO_2}$. Nous verrons plus loin l'interprétation que nous pouvons en faire.

Une première estimation des paramètres b_0 et b_i , nous amène à un modèle non significatif (% de variance expliquée $\simeq 20\%$).

De plus, l'analyse de résidus [6] , [13] nous indique qu'il existe certainement des formes non linéaires pour les X_i , en particulier sur les réacteurs 42 et 43 où la quasi totalité du Fer est précipitée. Ceci se retrouve à la lecture de la matrice de comparaison en cherchant les relations existant entre ΔFe et pH_E , $[\text{Fe}]_E, T_E$, $[\text{Cu}]_E$

Nous avons présenté fig. III-2, la partie de la matrice de comparaison relative à la précipitation du Fer dans les réacteurs 42-43-44 pour des seuils respectifs de corrélation et couplage de 0,60 et 0,26.

		<u>ΔFe 44</u>	<u>ΔFe 43</u>	<u>ΔFe 42</u>	
<u>R 44</u>	{	[Fe ²⁺]	b		
		pH	T		
		T	b		
<u>R 43</u>	{	[Fe ²⁺]	1	T	
		pH	b	T	
		T	b	T	
		[Cu]	T	b	
<u>R 42</u>	{	[Fe ²⁺]	b	T	1
		pH	b	b	b
		T	b	T	T
		[Cu]	b	T	T
<u>D 22</u>	{	[Fe ²⁺]	T	b	1
		pH	T	b	T
		[Cu]	b	T	b

b = blanc

Fig. III-2 - Matrice de comparaison

Nous avons alors supposé que , quelle que soit la relation existant entre deux variables, cette relation peut être approchée dans l'intervalle de variations considéré par un polynôme du 3^e degré.

L'équation (4) s'écrit alors :

$$\left[\text{Fe}^{2+} \right]_S = \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E + \frac{1}{1 + b_0 Z} \sum_{i=1}^5 (b_i x_i + c_i x_i^2 + d_i x_i^3)$$

(5)

Nous obtenons, respectivement pour chacun des réacteurs, les % de variance expliquée et les valeurs du F de Fisher pour la régression [16] (cf. définition et interprétation en Annexe 2) suivants :

Sans la variable Cuivre :

	66,6%	72%	83,3%	84,7%	82,2%
$F_{10;53}$	= 10,55	13,64	26,43	29,41	24,51

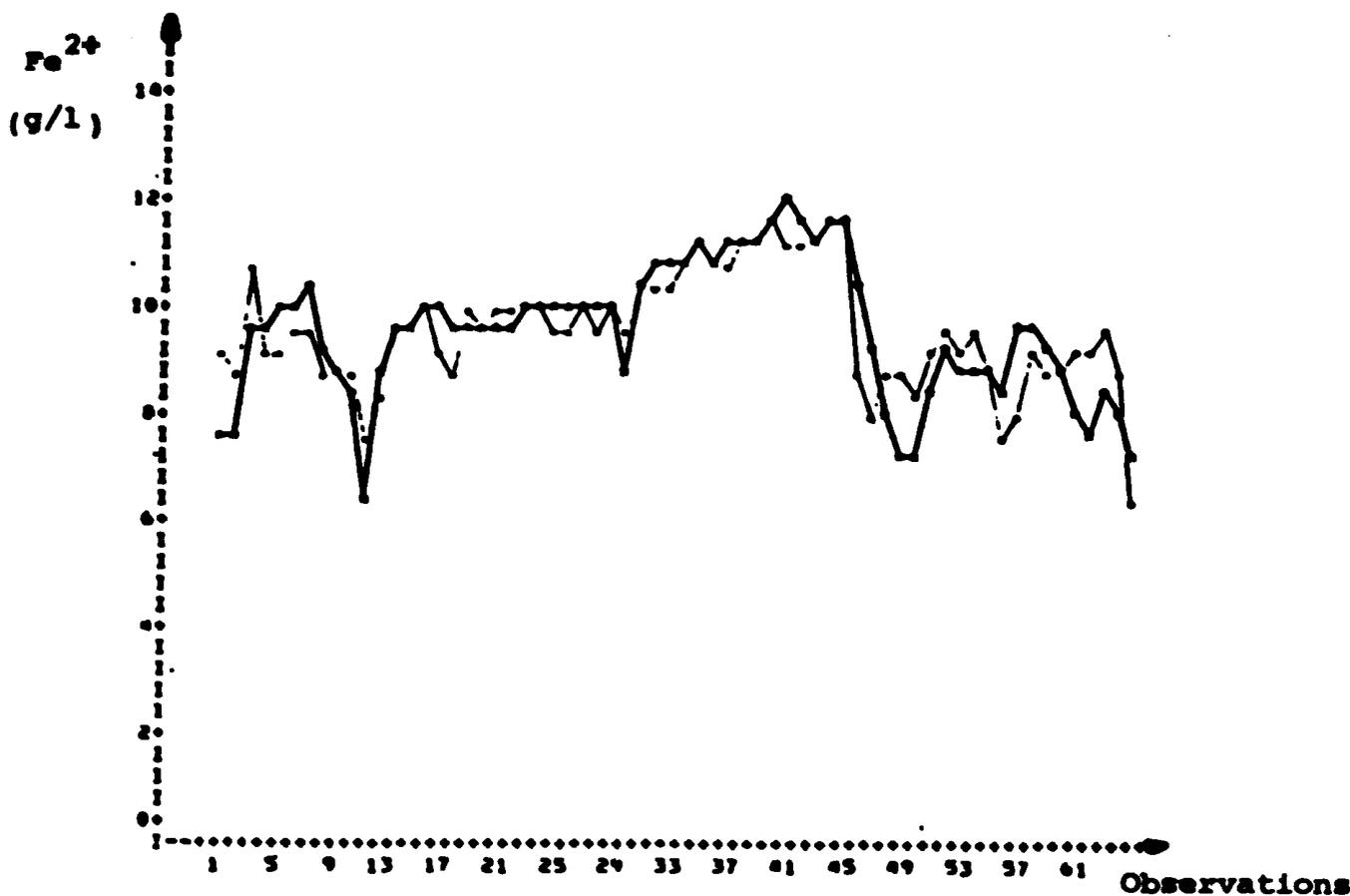
Avec variable Cuivre :

	68%	72,4%	83,3%	84,9%	83,7%
--	-----	-------	-------	-------	-------

Il appartiendra par la suite de choisir les modèles avec ou sans la variable Cuivre suivant que le coût de mesure en ligne de la concentration Cuivre sera ou non élevé par rapport à la précision gagnée.

Les figures III-3. a, b, c, d, e représentent les courbes valeurs observées, valeurs calculées en fonction de la chronologie des observations pour chacun des réacteurs, obtenues à partir des modèles ne tenant pas compte de la variable Cuivre.

On trouvera en Annexe 3 les tableaux des valeurs des coefficients b_0, b_1, c_1, d_1 .



Trait fort : Valeurs observées Très fin : Valeurs calculées

Fig. III-3 a : Concentration Fer²⁺ à la sortie du réacteur 42

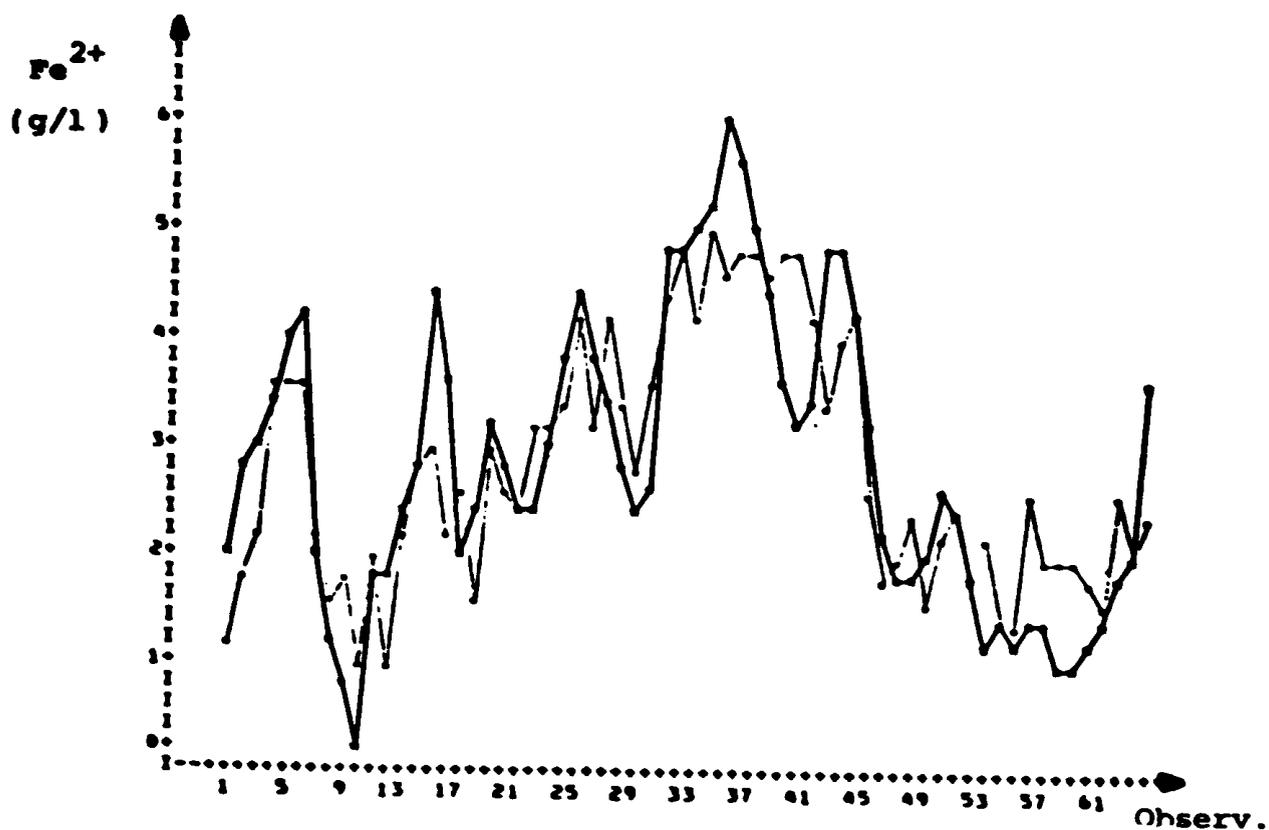


Fig. III-3 b : Concentration Fer²⁺ à la sortie du réacteur 43

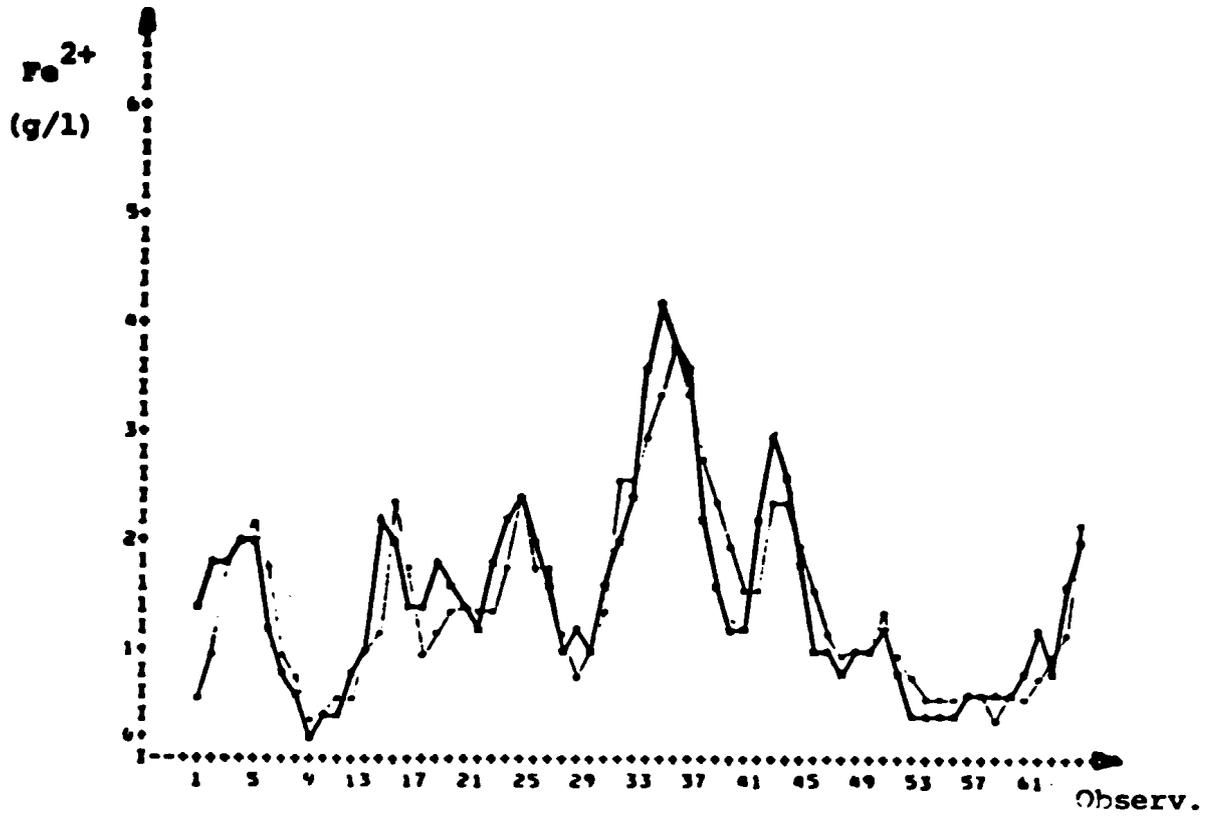


Fig. III-3.c : Concentration Fe^{2+} à la sortie du réacteur 44

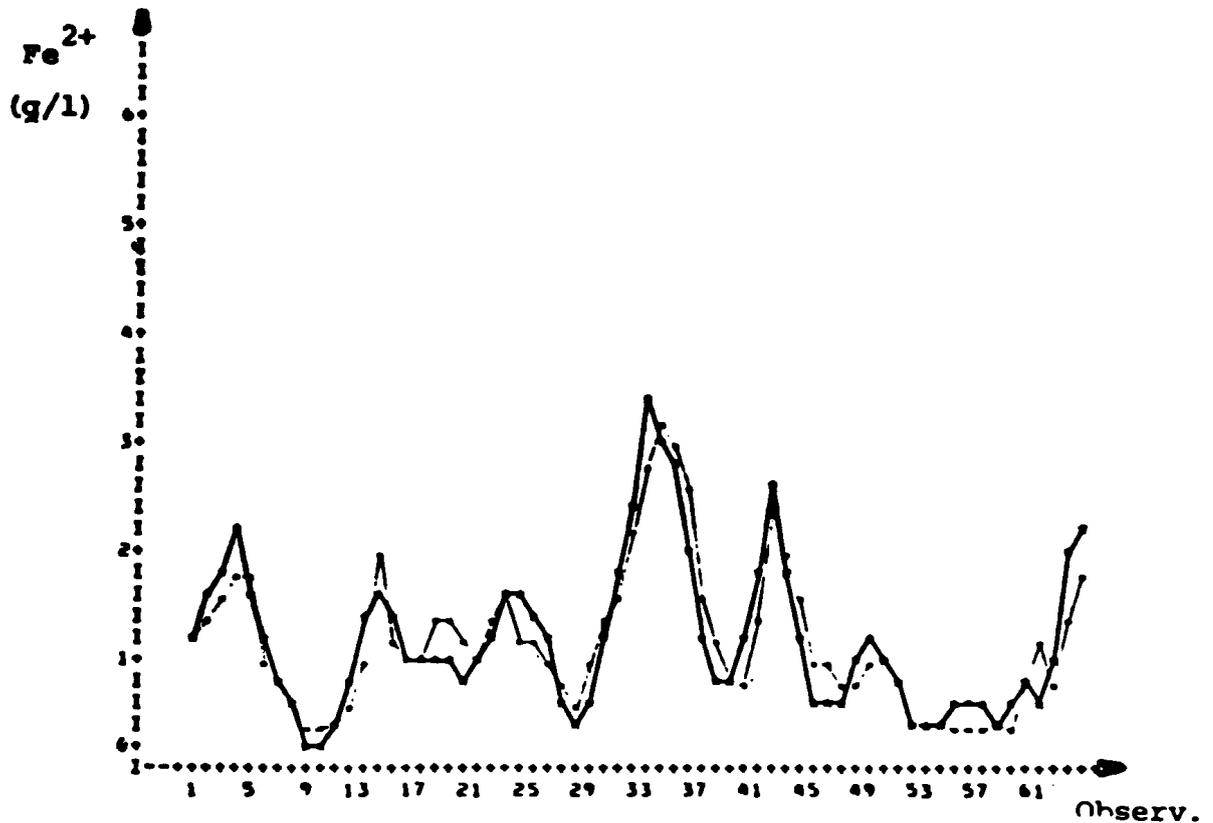


Fig. III-3.d : Concentration Fe^{2+} à la sortie du réacteur 45

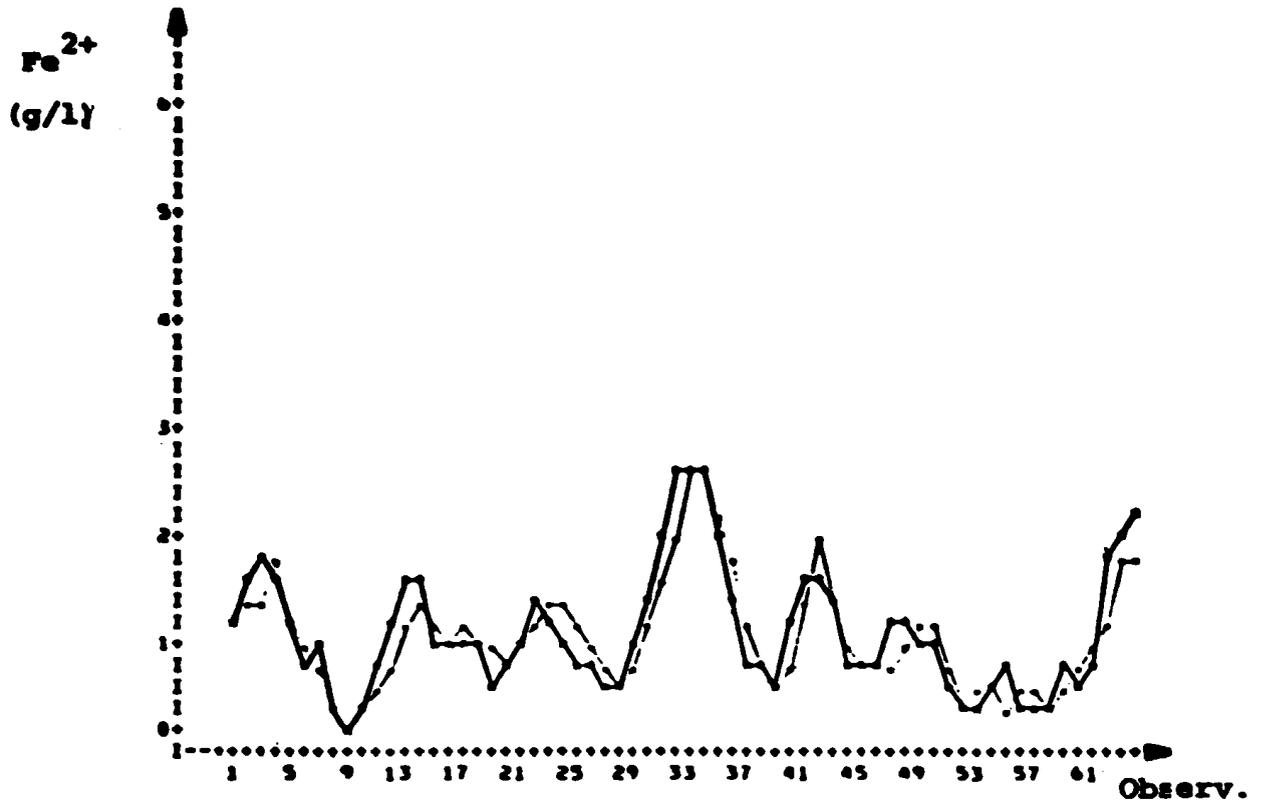


Fig.III-3.c : Concentration Fe^{2+} à la sortie du réacteur 46

On remarque que, le réacteur 43 étant le siège des plus importantes réactions, son fonctionnement est le plus instable et sa modélisation s'avère plus délicate que pour ses suivants.

Cependant, nous ne pouvons pas, par la suite, utiliser ce modèle dans un but de prédiction du Débit Oxygène, sa valeur mesurée n'étant pas assez significative pour être estimée à partir de ce modèle.

En effet, les contraintes de fonctionnement ont deux conséquences sur la campagne de mesure :

- Les variations de débit Oxygène sur les réacteurs 43 et 44 ne peuvent pas être très importantes,

- L'Oxygène envoyé sur le réacteur 43 l'est certainement en excès et son influence se retrouve sur le réacteur 44. Ainsi des fluctuations de débit Oxygène n'entraînent pas les modifications de concentration Fer que l'on attend à la sortie de ce réacteur.

Bien que ces points aient été abordés lors de la définition de la campagne de mesure, le degré de signification d'une variable ne peut être quantifié qu'après analyse des données.

De plus, une analyse plus fine des modèles obtenus confirme le fait que la variable Oxygène est peu significative sur les réacteurs 43 et 44. Nous avons procédé par étapes successives pour le calcul des coefficients b_0 , b_1 , c_1 , d_1 . L'étape 0 consistant en la recherche des coefficients pour $b_0 = 0$ et nous obtenions déjà pour chacun des réacteurs les pourcentages suivants de variance expliquée.

54,5% 72,2% 83,1% 83,6% 83,7%

L'optimum étant obtenu avec les pourcentages suivants :

68% 72,4% 83,3% 84,9% 83,7%

Nous vérifions effectivement que, sauf pour le réacteur 42, l'optimum est obtenu dès l'étape 0. L'introduction de la variable supplémentaire Débit O_2 n'apporte pratiquement pas d'information.

Ceci est également confirmé par les matrices de couplage et corrélation qui donnent respectivement les coefficients suivants entre la quantité de Fer précipité et le rapport Débit Oxygène/Débit pulpe pour

chaque réacteur:

	R 42	R 43	R 44	R 45
Couplage	0,367	0,224	0,241	0,305
Corrélation	0,742	0,154	0,422	0,637

Il n'existe de relation effective entre le débit Oxygène et la quantité Fer précipitée que pour les réacteurs 42 et 45. C'est une preuve supplémentaire du fait que l'Oxygène est excédentaire sur le réacteur 43 (puisque qu'il y a précipitation).

Cependant, afin de mieux cerner l'influence du débit Oxygène, nous recherchons un modèle différent de la précipitation du Fer qui tienne compte de façon plus sensible des variations de débit Oxygène.

Soit, à partir de (3):

$$\left[\text{Fe}^{2+} \right]_S = \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E + \frac{1}{Z} f(X)$$

$$\text{avec } Z = \frac{D}{QO_2} \text{ et } X^T = \left[\text{pH}_E, \text{pH}_S, T, \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E, \left[\text{Cu} \right]_E \right]$$

D'une part, nous supposons que l'influence de ΔFe sur le rendement Oxygène est négligeable par rapport aux autres variables, d'autre part, que $f(X)$ n'est plus sous forme additive, mais telle que :

$$f(X) = \prod_i a_i X_i$$

(3) devient alors :

$$\left[\text{Fe}^{2+} \right]_S = \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E + \frac{1}{Z} \prod_i a_i X_i$$

Soit encore :

$$\left[\text{Fe}^{2+} \right]_S = \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E + \frac{a}{Z} \cdot \text{pH}_E \cdot \text{pH}_S \cdot \left[\text{Fe}^{2+} \right]_E \cdot \left[\text{Cu} \right]_E$$

Où a est le coefficient à déterminer (cf. Annexe 3).

Nous obtenons ainsi, respectivement sur chaque réacteur, les pourcentages de variance expliquée et les tests de Fisher suivants :

	85,4%	18,2%	61,3%	54,6%
$F_{3;60}$:	92	4,46	29	23,2

Ce type de modèle, donnant la même importance au débit Oxygène qu'aux autres variables, s'avère plus précis pour le seul réacteur 42.

Ces résultats sont une autre preuve de l'excès d'Oxygène dans le réacteur 43.

Notons que les travaux de E. CHACON [7] appliqués à l'Hydrolyse confirment totalement cette hypothèse à partir d'une analyse par groupe de variables.

III-2-2 - Pertes Zinc

III-2-2-1 - Recherche de variables explicatives

C'est maintenant au deuxième objectif du THR que nous nous intéressons :

- Récupération du Zinc amené par les Ferrites.

Nous avons vu que le fonctionnement de l'Hydrolyse n'est pas optimum : une partie du Zinc ne peut pas être récupérée et est emportée par le précipité, pour les raisons énoncées en I-4-4.

L'expérience a permis de déterminer quelles en étaient les premières causes (Valeurs de pH trop élevées ou trop faibles principalement). Cependant, certains cas de grosses pertes sont parfois inexplicables.

Dans l'optique d'une étude statistique du phénomène, le nombre de variables à prendre en compte à priori est nécessairement élevé (plus de vingt dans notre cas). Or, toutes ces variables n'influent pas avec la même importance sur le résultat final : un tri des variables explicatives est donc nécessaire.

De plus, le respect du fonctionnement du type Goethite (cf. I-3-2) nous impose de tenir compte de la quantité de Fer dans le précipité. C'est pourquoi, la variable à expliquer n'est pas la teneur en Zinc du précipité, mais le rapport teneur Zinc/teneur Fer du précipité.

Les mesures étant inévitablement bruitées, et bien que la procédure de calcul de la transinformation soit relativement peu affectée par le bruit [7], le choix des seuils pour la détermination de la matrice de comparaison est toujours une étape délicate.

Pour cela, nous adoptons la méthode suivante :

1 - Choix à priori de deux seuils volontairement hauts, à partir d'une lecture rapide des matrices de couplage et corrélation, soit à partir de la moyenne des coefficients.

2 - Première recherche de modèle à partir des variables explicatives sélectionnées en 1.

3 - Augmentation progressive du nombre de variables explicatives par abaissement des seuils jusqu'à : où bien validité satisfaisante du modèle, ou bien seuils atteignant des valeurs qui ne sont plus significatives.

Les figures III-4 (a, b, c, d, e, f) représentent les matrices de comparaison utilisées pour la sélection des variables explicatives des rapports Zinc/fer dans chaque réacteur.

Les seuils respectifs de couplage (m_0) et de corrélation (r_0) sont notés NIV. 1 et NIV 2.

NIV1 = 0.304 NIV2 = 0.594

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	T				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43			1	1	
Z/F 42					1
NF2 46					
NF3 46					
PH 46					
NF3 45		T			
NF2 45	T		T		
PH 45		1	R		
NF3 44		1	1		
NF2 44			1		
PH 44		T			
DIF 44					
NF3 43				T	
NF2 43	T				
PH 43					
DIF 43		T			
NF3 42					
NF2 42				T	1
PH 42				T	1
DIF 42				T	1
TE 42			T		
NF3 22	T			T	T
NF2 22	T		T	T	T
PH 22				T	T

Fig. III-4 a

NIV1 = 0.299 NIV2 = 0.594

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	1				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43			1	1	
Z/F 42					T
NF2 46		T			
NF3 46					T
PH 46					
NF3 45		T			
NF2 45	T		T		
PH 45		1	R		T
NF3 44		1	1		
NF2 44	T		T		
PH 44	T	T	1		
DIF 44					
NF3 43				T	T
NF2 43	T	T			T
PH 43				T	
DIF 43		T			
NF3 42					T
NF2 42		T			T
PH 42					T
DIF 42					T
TE 42				T	
NF3 22	T				T
NF2 22	T	T		T	T
PH 22				T	T

Fig. III-4 b

Notations:

Z/F 46 à 42 : Rapport Zinc/Fer à la sortie de chaque réacteur.

NF2 46 à 22 : Concentration Fe^{2+} de la liqueur à la sortie de chaque réacteur.

NF3 46 à 22 : Concentration Fe^{3+} de la liqueur à la sortie de chaque réacteur.

pH 46 à 22 : pH de la solution pour chaque réacteur.

DIF 44 à 42 : Quantité de Fer précipitée dans chaque réacteur.

TE 42 : Température de la solution dans le réacteur 42.

NIV1 = 0.289 NIV2 = 0.549

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	1				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43			1	1	
Z/F 42				1	1
NF2 46		Y			
NF3 46					Y
PH 46					
NF3 45		Y			
NF2 45	Y	Y	Y		
PH 45		1	1	Y	
NF3 44		1	1		
NF2 44	Y		Y		
PH 44	Y	Y	1		
DIF 44					Y
NF3 43			Y	Y	Y
NF2 43	Y	Y		Y	
PH 43			Y		
DIF 43		Y			Y
NF3 42					Y
NF2 42		Y	Y	Y	1
PH 42					Y
DIF 42				Y	1
TE 42			Y		
NF3 22	Y				Y
NF2 22	Y	Y	Y	Y	Y
PH 22			Y	Y	Y

Fig. III-4 c

NIV1 = 0.279 NIV2 = 0.599

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	1				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43	Y			1	1
Z/F 42					Y
NF2 46	Y	Y			
NF3 46					Y
PH 46			Y		Y
NF3 45	Y	Y			Y
NF2 45	Y	Y	Y		Y
PH 45	Y	1	1	Y	
NF3 44		1	1		
NF2 44	Y	Y	Y		
PH 44	Y	Y	1		
DIF 44					Y
NF3 43				Y	Y
NF2 43	Y	Y		Y	Y
PH 43			Y		
DIF 43		Y			Y
NF3 42					Y
NF2 42		Y	Y	Y	1
PH 42					Y
DIF 42				Y	1
TE 42				Y	
NF3 22	Y			Y	Y
NF2 22	Y	Y	Y	Y	Y
PH 22			Y	Y	Y

Fig. III-4 d

NIV1 = 0.269 NIV2 = 0.599

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	1				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43	Y		1	1	
Z/F 42	Y	Y	Y	Y	1
NF2 46	Y	Y	Y		Y
NF3 46					Y
PH 46	Y	Y		Y	Y
NF3 45	Y	Y	Y	Y	Y
NF2 45	Y	Y	Y	Y	Y
PH 45	Y	1	1	Y	
NF3 44	Y	1	1		Y
NF2 44	Y	Y	Y		Y
PH 44	Y	Y	1		Y
DIF 44					Y
NF3 43	Y	Y	Y	Y	Y
NF2 43	Y	Y		Y	Y
PH 43			Y	Y	Y
DIF 43		Y			Y
NF3 42				Y	Y
NF2 42		Y	Y	Y	1
PH 42					Y
DIF 42				Y	1
TE 42			Y	Y	Y
NF3 22	Y		Y	Y	Y
NF2 22	Y	Y	Y	Y	Y
PH 22			Y	Y	Y

Fig. III-4 e

NIV1 = 0.259 NIV2 = 0.599

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 46	1				
Z/F 45	1	1			
Z/F 44	1	1	1		
Z/F 43	Y			1	1
Z/F 42	Y	Y	Y	Y	1
NF2 46	Y	Y	Y	Y	Y
NF3 46					Y
PH 46	Y	Y			Y
NF3 45	Y	Y	Y	Y	Y
NF2 45	Y	Y	Y	Y	Y
PH 45	Y	1	1	Y	
NF3 44	Y	1	1		Y
NF2 44	Y	Y	Y		Y
PH 44	Y	Y	1		Y
DIF 44		Y			Y
NF3 43	Y	Y	Y	Y	Y
NF2 43	Y	Y	Y	Y	Y
PH 43			Y		Y
DIF 43		Y			Y
NF3 42				Y	Y
NF2 42	Y	Y	Y	Y	1
PH 42					Y
DIF 42		Y		Y	1
TE 42		Y	Y	Y	Y
NF3 22	Y	Y	Y	Y	Y
NF2 22	Y	Y	Y	Y	Y
PH 22			Y	Y	Y

Fig. III-4 f

Nous trouverons en Annexe 5, les matrices de couplage et corrélation complètes qui ont servi de support à l'établissement des différentes matrices de comparaison.

Cependant, une difficulté supplémentaire est apparue tout au long de cette analyse : le faible nombre d'observations.

En effet, ATTNEAVE [9] a montré que pour être interprétables, l'entropie et la transinformation doivent être calculées à partir d'un nombre d'observations et d'un nombre de classes (ou intervalles de discrétisation) tels que :

$$\text{NOBS} > \prod_i (\text{Nc}_i - 1)$$

où Nc_i est le nombre de classes de la variable i .

Dans notre cas, le nombre d'observations est 62 et l'analyse se faisant par paires, i vaut 2. Le nombre maximum de classes est donc 8, valeur pour laquelle les matrices de la fig. III-4 ont été déterminées.

Afin d'éviter que le choix d'un nombre de classes égal à 8 ne nous entraîne vers une mauvaise interprétation des résultats de la matrice de couplage, nous avons calculé plusieurs matrices de couplage, pour des nombres de classes différents et inférieurs à 8.

En effet, vu le faible nombre probable d'observations dans chaque classe, il se peut que certaines fortes valeurs d'un coefficient de couplage ne soient pas le reflet d'une relation effective, si cette valeur n'est pas conservée dans plusieurs discrétisations voisines. Car la discrétisation équiprobable donne des résultats similaires pour des nombres de classes différents, mais restant dans un domaine acceptable ($\text{Nc} > 3$ et tel que $\text{NOBS} > \prod_i (\text{Nc}_i - 1)$) [7]. Les variables telles que leur coefficient de couplage reste sensiblement constant sont effectivement liées par une relation dont l'intensité est donnée par la valeur du coefficient.

Nous obtenons des matrices dont les valeurs moyennes des coefficients sont de plus en plus petites lorsque le nombre de classes diminue. Mais le principal intérêt en est effectivement la confirmation de certaines relations.

Nous montrons sur les fig. III-5, a, b, c, d, e, f, six discrétisations différentes de 8 à 3 classes, où nous avons repéré quelques cas significatifs de confirmation ou de rejet de relations possibles entre les variables.

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 45	0.376	1.002			
Z/F 44	0.340	0.422	1.002		
Z/F 43	0.239	0.256	0.332	1.001	
Z/F 42	0.277	0.271	0.277	0.304	1.001
NF2 46	0.262	0.308	0.273	0.269	0.277
NF3 46	0.246	0.263	0.260	0.226	0.299
PH 46	0.277	0.284	0.237	0.258	0.279
NF3 45	0.262	0.347	0.276	0.273	0.258
NF2 45	0.346	0.295	0.368	0.277	0.284
PH 45	0.268	0.355	0.293	0.306	0.267
NF3 44	0.272	0.321	0.343	0.257	0.277
NF2 44	0.306	0.266	0.308	0.252	0.244
PH 44	0.300	0.334	0.346	0.265	0.269
DIF 44	0.209	0.267	0.230	0.266	0.295
NF3 43	0.269	0.271	0.306	0.328	0.308
NF2 43	0.329	0.299	0.267	0.281	0.300
PH 43	0.239	0.252	0.309	0.289	0.248
DIF 43	0.237	0.335	0.245	0.269	0.295
NF3 42	0.226	0.220	0.256	0.271	0.299
NF2 42	0.263	0.303	0.292	0.306	0.435
PH 42	0.213	0.226	0.220	0.248	0.269
DIF 42	0.259	0.267	0.248	0.311	0.365
TE 42	0.227	0.268	0.322	0.277	0.273
NF3 22	0.314	0.263	0.267	0.229	0.497
NF2 22	0.339	0.303	0.322	0.310	0.370
PH 22	0.234	0.252	0.302	0.302	0.314

Fig. III-5 a : Matrice de couplage (8 classes)

Les valeurs encadrées montrent trois types de variations possibles.

1 - Cas où le coefficient est fort et reste fort par rapport aux autres : il y a une relation effective.

2 - Cas où le coefficient chute brutalement pour rester constant et faible : il n'y a pas de relation.

3 - Cas où le coefficient est sensiblement constant quelle que soit la discrétion : bien que sa valeur soit faible il y a une relation faible mais elle existe.

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 45	0.343	1.001			
Z/F 44	0.307	0.415	1.002		
Z/F 43	0.314	0.259	0.275	1.001	
Z/F 42	0.248	0.246	0.192	0.293	1.001
NF2 46	0.256	0.358	0.309	0.258	0.212
NF3 46	0.199	0.249	0.189	0.203	0.245
PH 46	0.295	0.199	0.170	0.215	0.167
NF3 45	0.242	0.316	0.264	0.156	0.261
NF2 45	0.291	0.245	0.328	0.160	0.148
PH 45	0.243	0.368	0.327	0.217	0.192
NF3 44	0.202	0.256	0.319	0.217	0.249
NF2 44	0.242	0.265	0.299	0.222	0.233
PH 44	0.255	0.334	0.357	0.250	0.164
DIF 44	0.163	0.128	0.192	0.160	0.222
NF3 43	0.203	0.222	0.187	0.292	0.215
NF2 43	0.281	0.252	0.281	0.275	0.203
PH 43	0.242	0.226	0.232	0.315	0.213
DIF 43	0.217	0.197	0.184	0.230	0.274
NF3 42	0.167	0.202	0.151	0.217	0.194
NF2 42	0.262	0.279	0.166	0.354	0.355
PH 42	0.163	0.167	0.164	0.141	0.238
DIF 42	0.275	0.238	0.211	0.245	0.272
TE 42	0.156	0.298	0.279	0.288	0.190
NF3 22	0.303	0.263	0.206	0.215	0.363
NF2 22	0.385	0.285	0.265	0.230	0.340
PH 22	0.257	0.252	0.210	0.258	0.179

Fig. III-5 b : Matrice de couplage (7 classes)

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 45	0.343	1.002			
Z/F 44	0.316	0.419	1.002		
Z/F 43	0.250	0.191	0.278	1.002	
Z/F 42	0.151	0.154	0.165	0.133	1.002
NF2 46	0.215	0.240	0.229	0.142	0.256
NF3 46	0.156	0.121	0.084	0.161	0.162
PH 46	0.199	0.269	0.164	0.150	0.089
NF3 45	0.200	0.262	0.241	0.144	0.133
NF2 45	0.206	0.193	0.293	0.190	0.164
PH 45	0.203	0.303	0.243	0.222	0.123
NF3 44	0.218	0.204	0.328	0.117	0.161
NF2 44	0.241	0.256	0.248	0.176	0.136
PH 44	0.222	0.263	0.311	0.193	0.161
DIF 44	0.078	0.128	0.171	0.168	0.156
NF3 43	0.133	0.139	0.212	0.223	0.210
NF2 43	0.221	0.196	0.179	0.168	0.231
PH 43	0.141	0.133	0.196	0.258	0.129
DIF 43	0.171	0.183	0.228	0.213	0.165
NF3 42	0.151	0.171	0.132	0.150	0.148
NF2 42	0.213	0.175	0.148	0.227	0.306
PH 42	0.154	0.081	0.149	0.120	0.176
DIF 42	0.161	0.212	0.185	0.136	0.299
TE 42	0.197	0.203	0.256	0.196	0.273
NF3 22	0.153	0.106	0.186	0.128	0.258
NF2 22	0.306	0.256	0.223	0.249	0.239
PH 22	0.117	0.090	0.136	0.185	0.148

Fig. III - 5 c : Matrice de couplage (6 classes)

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42
Z/F 45	0.309	1.002			
Z/F 44	0.241	0.333	1.002		
Z/F 43	0.180	0.154	0.261	1.002	
Z/F 42	0.049	0.099	0.100	0.185	1.001
NF2 46	0.252	0.252	0.183	0.073	0.088
NF3 46	0.113	0.141	0.091	0.099	0.142
PH 46	0.088	0.120	0.153	0.035	0.119
NF3 45	0.220	0.220	0.213	0.091	0.171
NF2 45	0.220	0.217	0.210	0.152	0.091
PH 45	0.194	0.246	0.204	0.121	0.075
NF3 44	0.178	0.204	0.274	0.170	0.148
NF2 44	0.125	0.196	0.165	0.136	0.199
PH 44	0.231	0.212	0.332	0.097	0.130
DIF 44	0.024	0.053	0.050	0.091	0.175
NF3 43	0.066	0.106	0.144	0.208	0.200
NF2 43	0.106	0.179	0.156	0.136	0.215
PH 43	0.135	0.106	0.138	0.268	0.192
DIF 43	0.150	0.170	0.153	0.095	0.134
NF3 42	0.077	0.121	0.152	0.154	0.114
NF2 42	0.233	0.190	0.134	0.264	0.276
PH 42	0.145	0.091	0.111	0.055	0.122
DIF 42	0.167	0.136	0.132	0.167	0.255
TE 42	0.104	0.161	0.259	0.197	0.137
NF3 22	0.126	0.130	0.135	0.116	0.137
NF2 22	0.221	0.215	0.149	0.185	0.217
PH 22	0.130	0.088	0.098	0.145	0.087

Fig. III-5 d : Matrice de couplage (5 classes)

III-2-2-2 - Analyse statistique

La recherche de modèles du rapport Zinc/Fer est effectuée suivant le même principe que pour la modélisation de la Précipitation Fer.

Les modèles obtenus sont, pour chaque réacteur, de la forme suivante :

$$\text{Zn/Fe} = \sum_{i=1}^n (a_i X_i + b_i X_i^2 + c_i X_i^3) \quad (7)$$

où n : nombre choisi de variables explicatives.

X_i : Variables explicatives déterminées à partir des matrices de comparaison.

Nous avons de plus volontairement restreint le domaine des X_i aux seules variables pH, T, $[\text{Fe}^{2+}]$ pour des raisons de facilité de mesure en ligne.

Nous obtenons ainsi les pourcentages de variance expliquée et le test de Fisher suivants :

R42	R43	R44	R45	R46
76%	74,8%	80%	87,4%	86%

$$F_{7;56} = 25,3 \quad F_{11;52} = 15,75 \quad F_{16;47} = 11,76 \quad F_{18;45} = 17,36 \quad F_{26;36} = 8,50$$

Les figures III-6 (a, b, c, d, e) représentent les courbes : Valeurs observées - Valeurs calculées en fonction de la chronologie des observations.

Trait fort : Valeurs observées - observations,

Trait fin : Valeurs calculées - observations.

Les coefficients a_i, b_i, c_i pour chaque réacteur sont rassemblés dans des tableaux en Annexe 4.

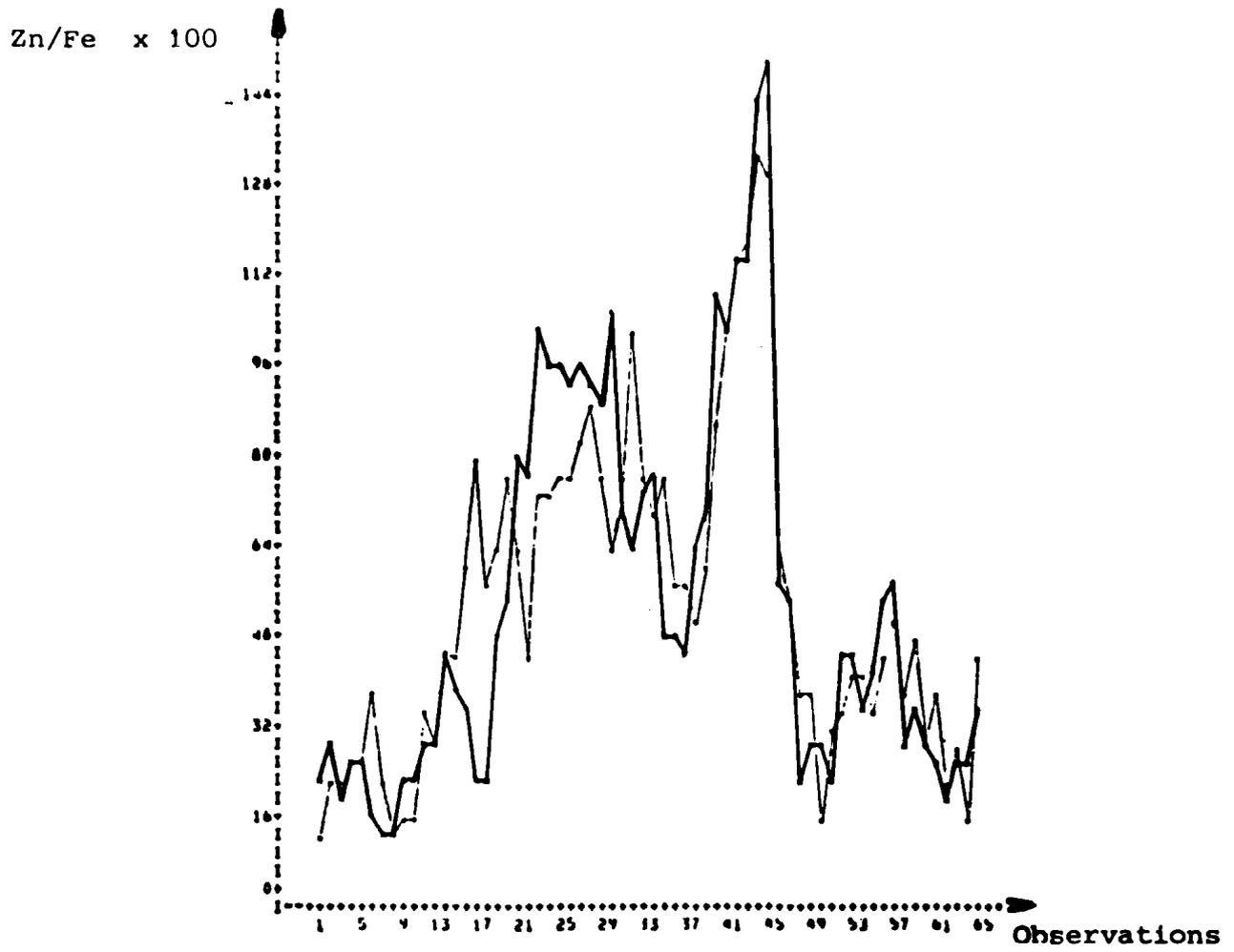


Fig. III-6 a : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 42

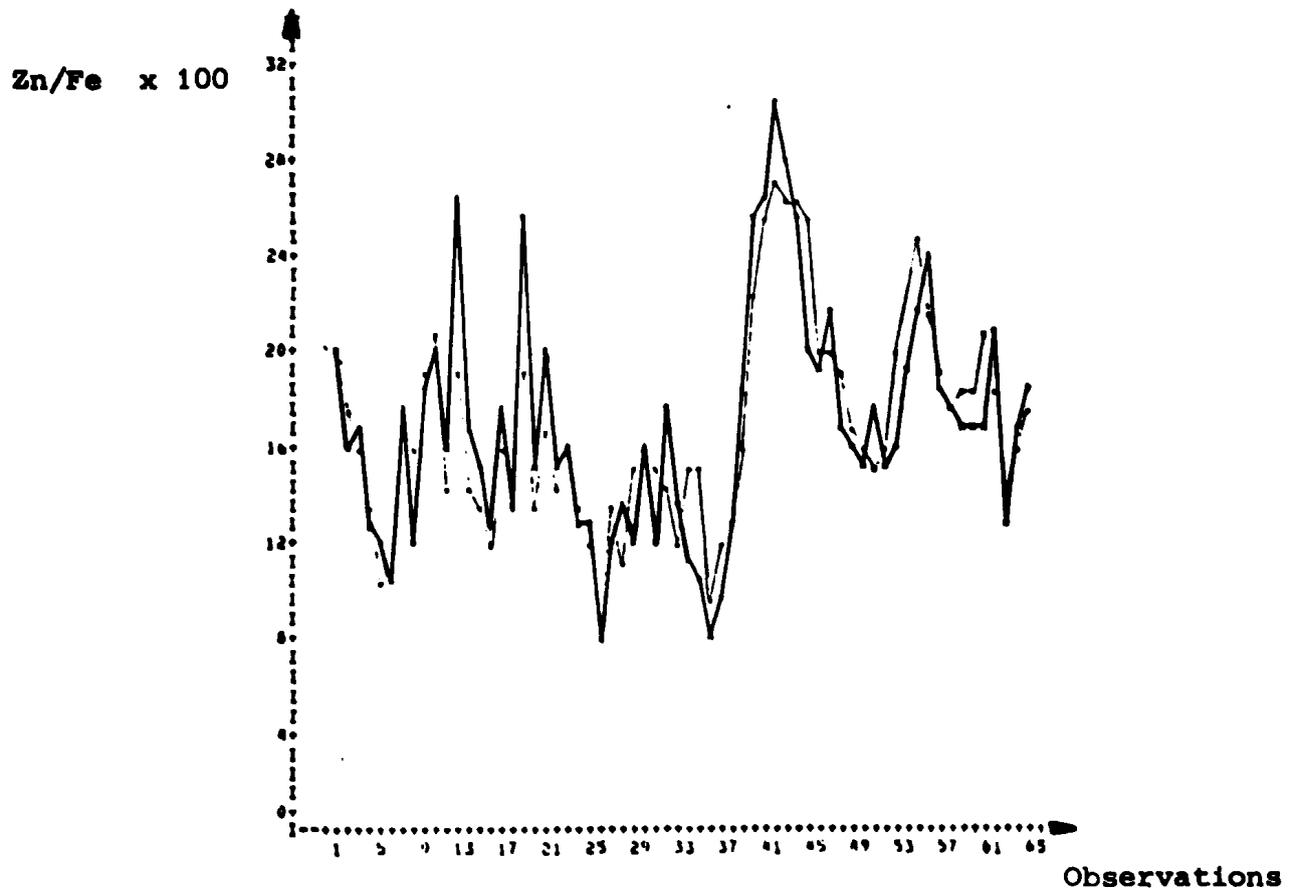


Fig. III-6 b : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 43

III-2-2-2 - Analyse statistique

La recherche de modèles du rapport Zinc/Fer est effectuée suivant le même principe que pour la modélisation de la Précipitation Fer.

Les modèles obtenus sont, pour chaque réacteur, de la forme suivante :

$$\text{Zn/Fe} = \sum_{i=1}^n (a_i X_i + b_i X_i^2 + c_i X_i^3) \quad (7)$$

où n : nombre choisi de variables explicatives.

X_i : Variables explicatives déterminées à partir des matrices de comparaison.

Nous avons de plus volontairement restreint le domaine des X_i aux seules variables pH, T, $[\text{Fe}^{2+}]$ pour des raisons de facilité de mesure en ligne.

Nous obtenons ainsi les pourcentages de variance expliquée et le test de Fisher suivants :

R42	R43	R44	R45	R46
76%	74,8%	80%	87,4%	86%
$F_{7;56} = 25,3$	$F_{11;52} = 15,75$	$F_{16;47} = 11,76$	$F_{18;45} = 17,36$	$F_{26;36} = 8,50$

Les figures III-6 (a, b, c, d, e) représentent les courbes : Valeurs observées - Valeurs calculées en fonction de la chronologie des observations.

Trait fort : Valeurs observées - observations,

Trait fin : Valeurs calculées - observations.

Les coefficients a_i, b_i, c_i pour chaque réacteur sont rassemblés dans des tableaux en Annexe 4.

Zn/Fe x 100

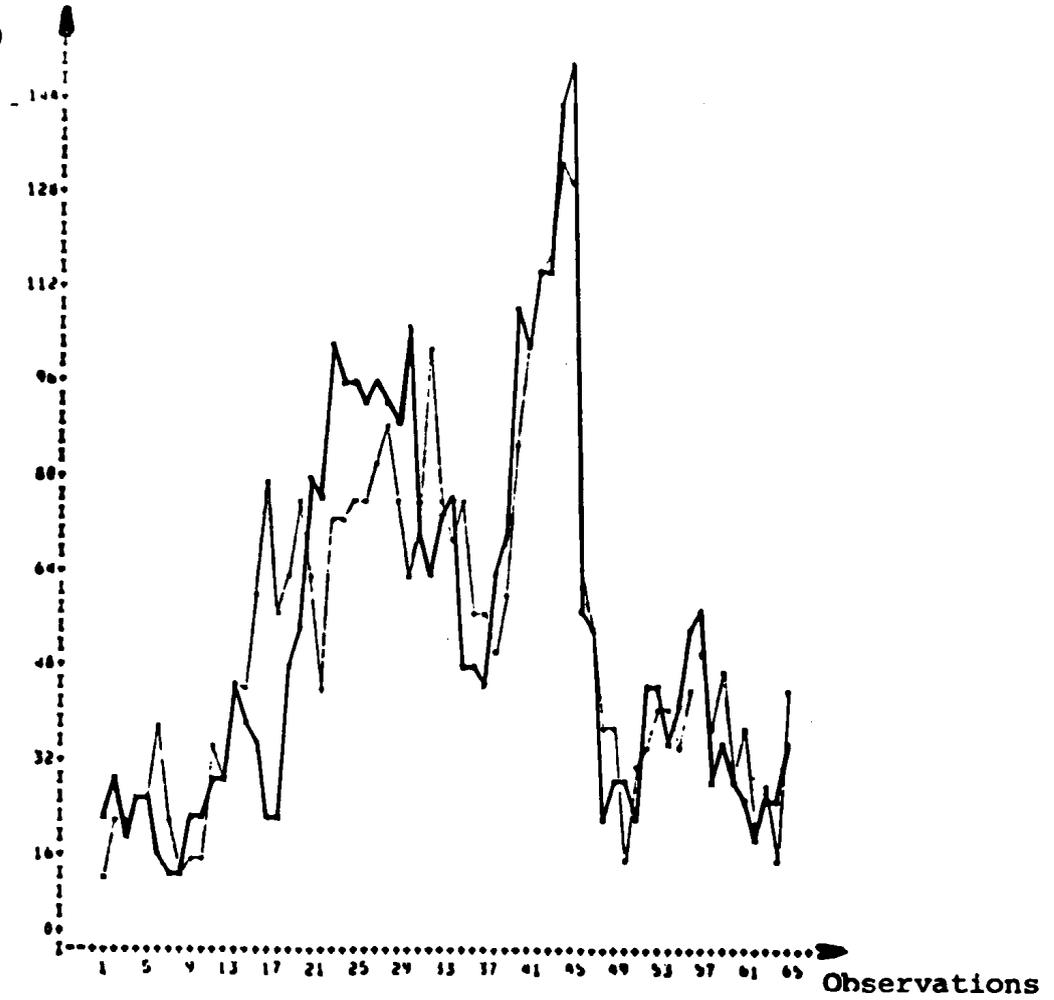


Fig. III-6 a : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 42

Zn/Fe x 100

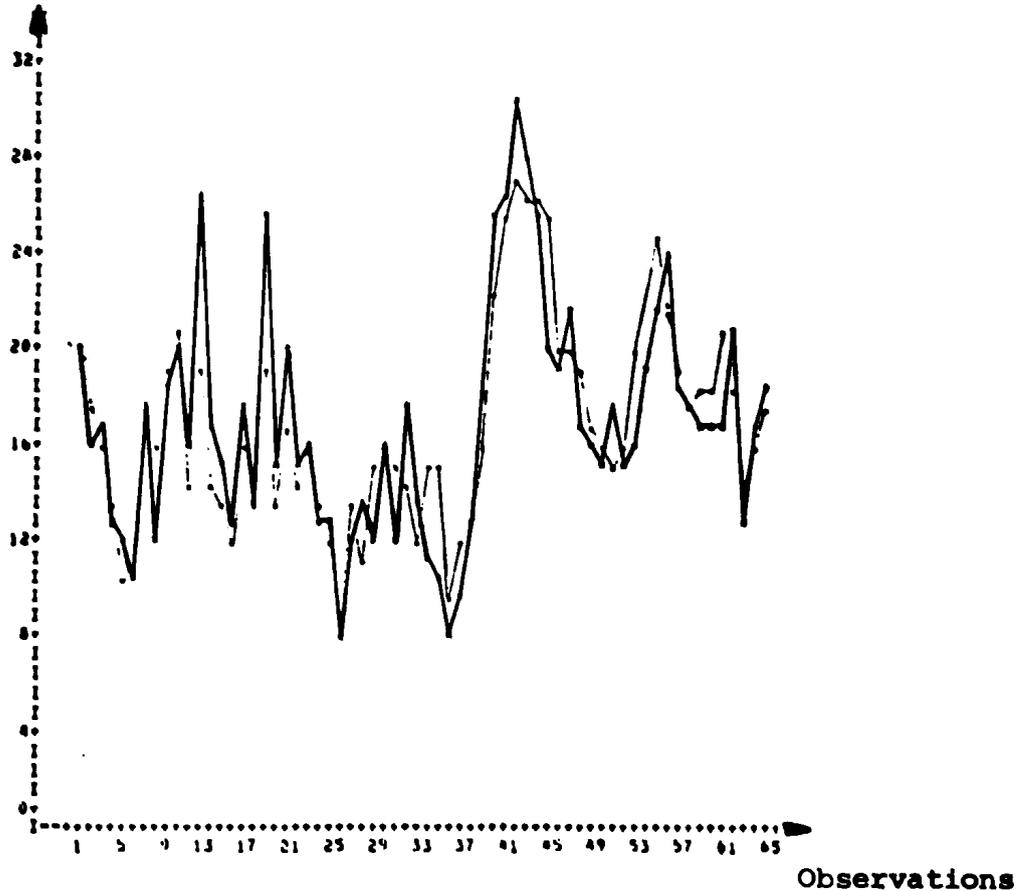


Fig. III-6 b : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 43

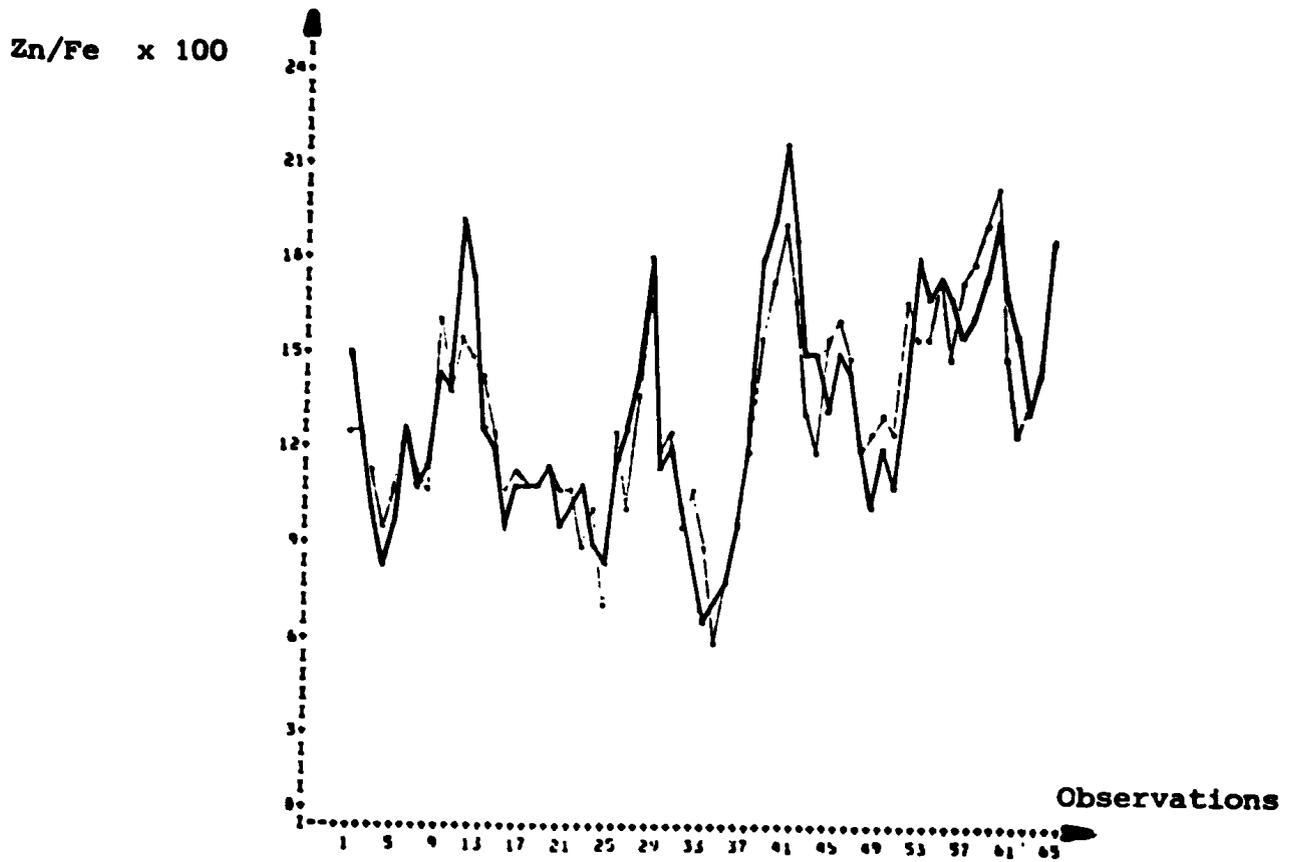


Fig. III-6 c : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 44

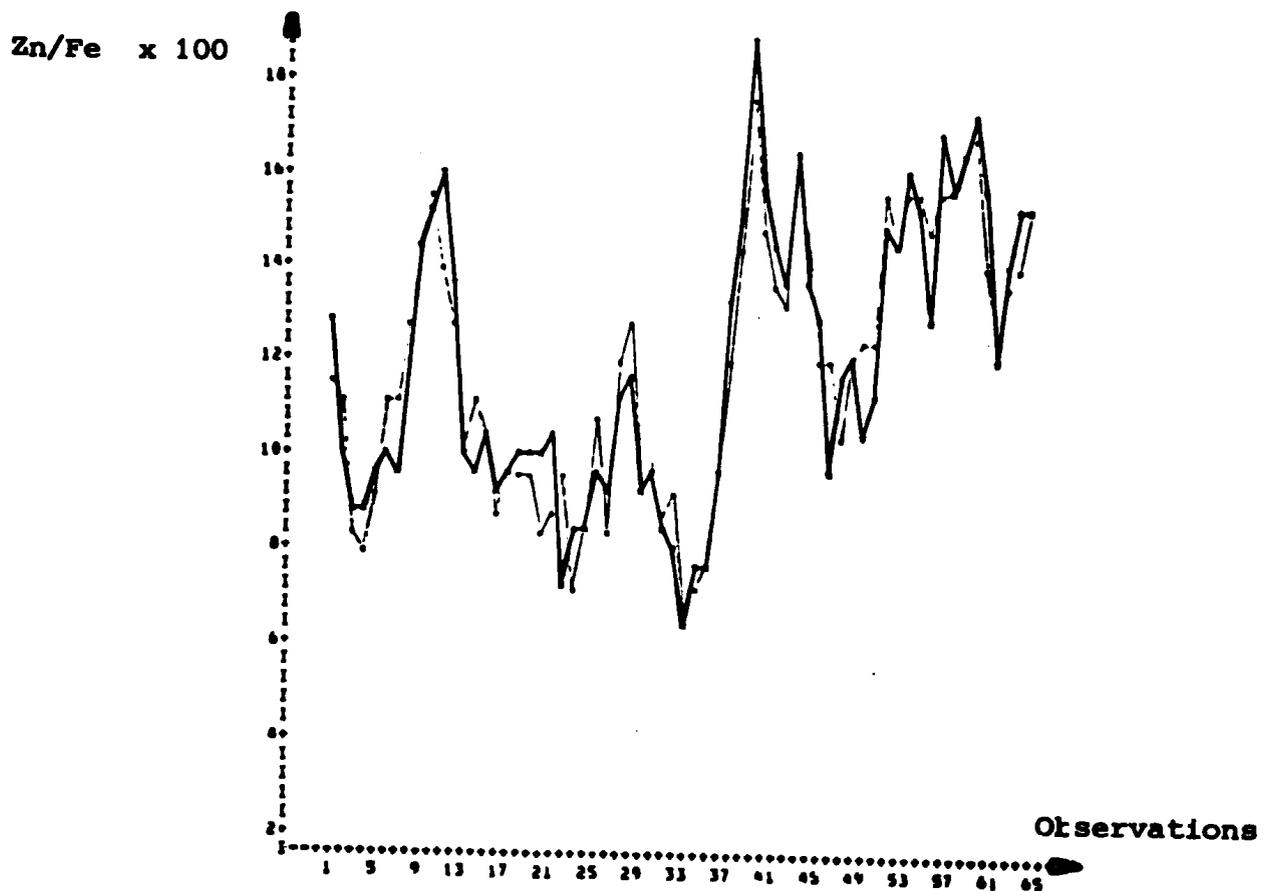


Fig. III-6 d : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 45

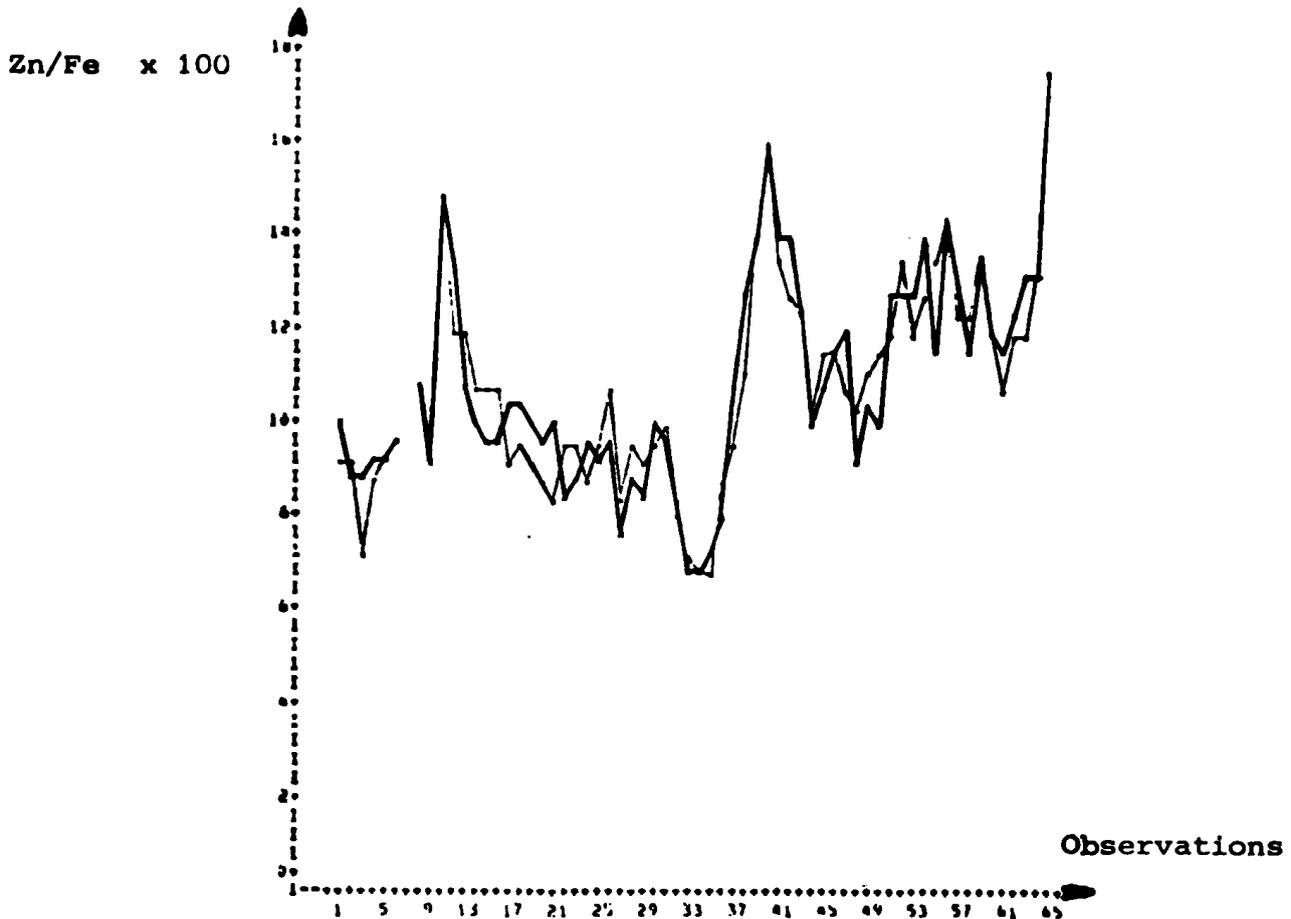


Fig. III-6 e : Rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 46

Le but de cette étude étant la minimisation des pertes Zinc, soit aussi la minimisation du rapport Zn/Fe à la sortie de l'Hydrolyse, il est clair que c'est le réacteur 46 (Dernier réacteur de la chaîne) qui attirera notre attention.

Quelques remarques immédiates peuvent être faites au vu de ces courbes (fig.III-6).

- Le fonctionnement du réacteur 46 apparaît clairement : son but est de dissoudre une partie de l'excès de zinc par acidification. Nous retrouvons effectivement la courbe du réacteur 45 dont la valeur moyenne est diminuée, plus particulièrement pour les fortes valeurs.

- De plus, deux fonctionnements distincts apparaissent tout au long de la chaîne et sont surtout visibles sur le réacteur 46 : un fonctionnement à faibles pertes Zinc ($Zn/Fe < 10\%$, observations 13 à 30) et un fonctionnement à fortes pertes Zinc ($Zn/Fe > 10\%$, observations 40 à 64).

- Par contre nous observons un fonctionnement sensiblement opposé du réacteur 42.

III-2-3 - Temps de Filtration

III-2-3-1 - Mesure du Temps de Filtration

Lors de la description de l'Hydrolyse, nous avons montré le rôle du décanteur qui est de séparer liquide et solide avant d'envoyer le précipité sur des filtres rotatifs pour lavage. C'est à ce niveau qu'apparaît le phénomène de filtration sur le site. Mais le temps de séjour dans le décanteur fluctuant entre 24 et 36 heures, il nous aurait été impossible lors de la campagne de mesures d'effectuer des relevés cohérents avec la conduite de l'Hydrolyse. De plus un certain nombre de réactions totalement inconnues doivent se dérouler dans le décanteur. Afin de nous en affranchir, nous supposons qu'un fonctionnement optimum, du point de vue de la filtration, à la sortie du réacteur 46 entraîne le meilleur fonctionnement sur les filtres après décanteur.

Pour cela, lors de la campagne de mesures, il a été prélevé, à la sortie du réacteur 46, un échantillon de pulpe pour lequel on a mesuré le temps de filtration dans des conditions identiques à chaque observation.

III-2-3-2 - Approche statistique

La filtration étant un phénomène plutôt qualitatif, il est difficile d'en rechercher un modèle quantitatif. Aussi, les résultats ne sont interprétés que de façon qualitative en ne retenant que l'évolution de la filtration par rapport aux paramètres (pH principalement) plutôt que les valeurs absolues trouvées.

Suivant toujours le même principe, nous recherchons un modèle de la forme suivante :

$$TFILTR = \sum_{i=1}^n (a_i X_i + b_i X_i^2 + c_i X_i^3)$$

(Temps de filtration)

L'analyse des matrices de corrélation et couplage nous permet de trier les variables les plus significatives, ainsi :

$$x^T = \left[\left[\text{Fe}^{2+} \right] \quad 42', \text{pH}_{42}', \text{pH}_{44}', \text{pH}_{45}', \text{pH}_{46}' \right]$$

Nous obtenons :

77,6% de variance expliquée

$F_{15;48} = 11,055$ pour le test de Fisher.

Les valeurs des différents coefficients du modèle se trouve en Annexe 4.

La figure III-7 représente les Valeurs observées - Valeurs calculées en fonction de la chronologie des observations.

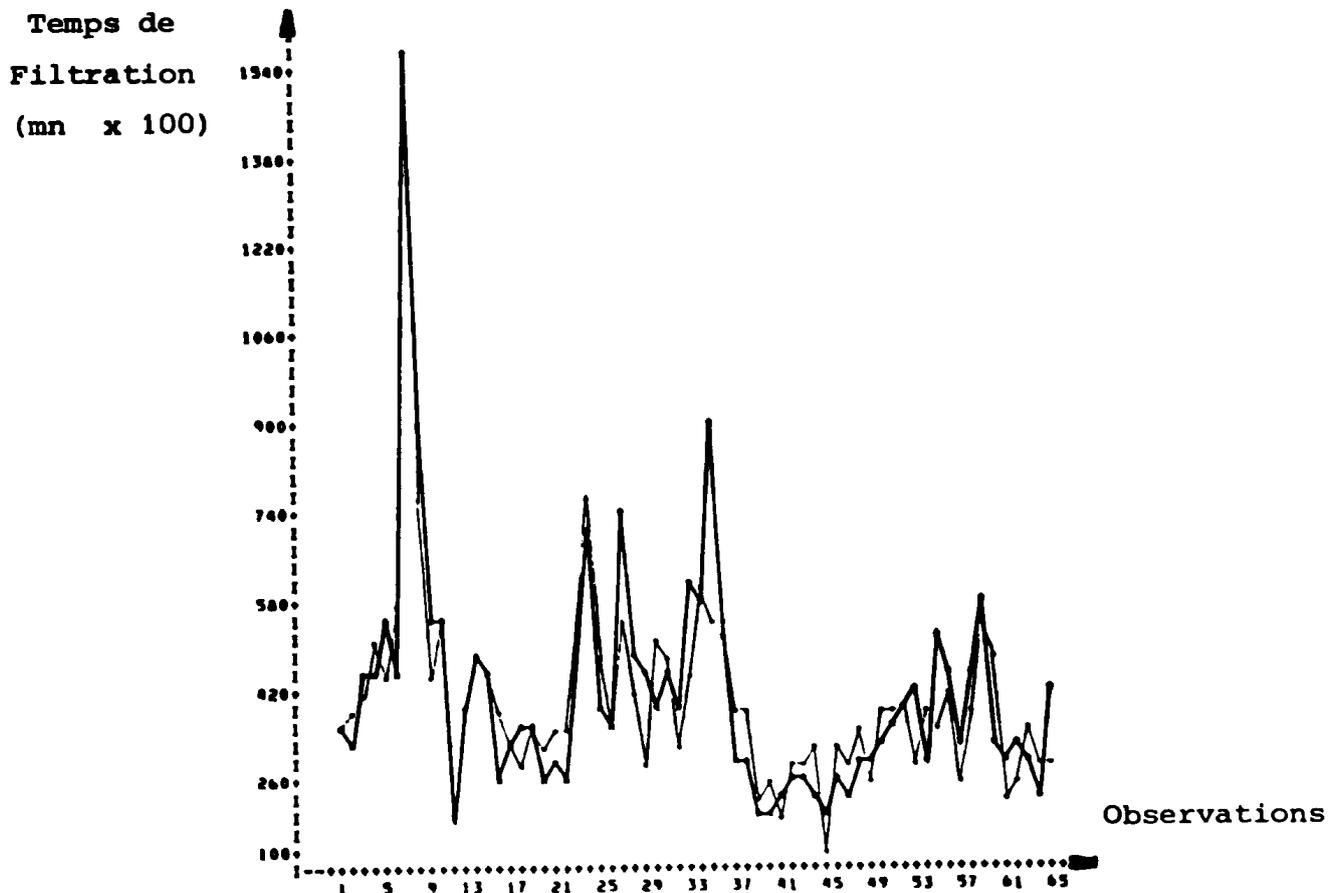


Fig. III-7 : Temps de filtration à la sortie du réacteur 46

Une première constatation est que la courbe représentative du temps de Filtration a peu d'analogie avec celle du rapport Zn/Fe.

CONCLUSION

Cette analyse, abordée avant que tous les moyens de mesure ne soient installés et opérationnels, fait apparaître toute l'importance de la partie Mesure - Instrumentation lors d'une étude de processus industriel.

Cependant, les difficultés rencontrées pour l'obtention de mesures fiables n'apparaissent qu'au moment même de l'analyse, sans laquelle elles seraient restées dans l'ombre. Finalement, cette étape est inévitable quel que soit le processus à étudier. Elle est plus ou moins longue et délicate à mener suivant la complexité du processus : Dans notre cas la plupart des capteurs installés (pH, $[Fe^{++}]$) ont été réalisés sur place.

Et, bien que le modèle statique de Précipitation du Fer ne soit pas parfait, sa recherche nous a encore amené à perfectionner les différents capteurs existants. A l'heure actuelle, pratiquement tous les points de mesure en ligne des paramètres principaux ($[Fe^{++}]$, pH, Débit Oxygène par réacteur) sont en place et devraient tous être opérationnels très rapidement. Une nouvelle campagne de mesure peut donc être facilement menée, si nécessaire, et un nouveau modèle de la Précipitation Fer rapidement établi à partir des méthodologies mises au point. Ceci dans le but d'obtenir des régulations plus précises au niveau de chaque réacteur.

Par contre, les résultats d'analyse sur Précipité ne peuvent être connus qu'après analyse en Laboratoire suivant le processus décrit en introduction de ce chapitre. L'obtention de ces modèles n'a pas été influencée par le flou de la mesure du débit Oxygène et devrait donner des résultats acceptables (dans la plage de variation des paramètres que nous avons considérée) pour la recherche de points de consigne optimaux.

De plus, une analyse rapide des courbes Précipitation Fer, Rapport Zn/Fe nous indique qu'un bon fonctionnement du point de vue pertes Zinc est celui relatif aux observations 13 à 30 correspondant à un profil de Précipitation Fer le plus étalé possible pour le nombre de réacteurs dont nous disposons.

Par contre, entre ces observations, nous observons deux fonctionnements différents du point de vue Temps de Filtration:

- Bonne Filtration de l'observation 13 à l'observation 20,
- Moyenne et parfois mauvaise Filtration de l'observation 20 à l'observation 30.

Au contraire, un mauvais fonctionnement du point de vue pertes Zinc se retrouve entre les observations 40 et 64 correspondant à un fonctionnement pour lequel la totalité du Fer est précipitée dès la sortie du réacteur 43 (Précipitation rapide). Nous obtenons, bien sûr, une bonne filtration puisqu'il y a excès de Zinc dans le précipité, ce qui laisse apparaître l'existence d'un compromis Pertes Zinc - Filtration.

Nous verrons que cette première orientation est confirmée par la suite lors du calcul des points de consigne optimaux.

ANNEXES

ANNEXE 1

CALCUL DE L'INCERTITUDE SUR LES DEBITS MASSIQUES

Rappelons les notations employées.

$Fe^T = [Fe_0, \dots, Fe_5]$ Débits massiques de Fer en solution (Kg/h).

$Cu^T = [Cu_0, \dots, Cu_5]$ Débits massiques de Cuivre en solution (Kg/h).

$Pr^T = [Pr_1, \dots, Pr_5]$ Débits massiques de Matières solides (Kg/h).

$Fe_p^T = [Fe_{p_0}, \dots, Fe_{p_5}]$ Teneurs en Fer du Précipité ou Matières solides.

$Cu_p^T = [Cu_{p_0}, \dots, Cu_{p_5}]$ Teneurs en Cuivre du Précipité ou Matières solides.

Fe_c, Cu_c = Teneurs Fer, Cuivre de la Calcine.

L'expression du bilan massique pour le réacteur i s'écrit :

$$[Fe_i] - [Fe_{i-1}] - [Cu_i] + [Cu_{i-1}] + \underbrace{\left[\frac{Fe_{p_{i-1}}}{Fe_c} - \frac{Cu_{p_{i-1}}}{Cu_c} \right]}_A \times Pr_{i-1} - \underbrace{\left[\frac{Fe_{p_i}}{Fe_c} - \frac{Cu_{p_i}}{Cu_c} \right]}_B \times Pr_i = 0 \quad (1)$$

Nous supposons que les analyses faites sur Matières solides sont effectuées sans erreur, alors les termes A et B sont des constantes.

Les seules erreurs proviennent des mesures des débits massiques.

Nous posons :

$[Fe]_i, [Cu]_i$: Concentration en Fer et Cuivre solubles dans le réacteur i (g/l).

Ps_i : Poids sec du Précipité dans le réacteur i (g/l)

D : Débit global de pulpe. (m^3/h).

Alors (1) s'écrit :

$$D \times \left[[Fe]_i - [Fe]_{i-1} - [Cu]_i + [Cu]_{i-1} + APs_{i-1} - BPs_i \right] = 0$$

$$\text{Notée : } D \sum_j [C_j] = 0$$

Alors l'erreur absolue sur $D \sum_j [C_j]$ est :

$$\begin{aligned} \Delta \left(D \sum_j [C_j] \right) &= \Delta D \cdot \sum_j [C_j] + D \cdot \sum_j \Delta [C_j] \\ &= \Delta D \cdot \sum_j [C_j] + D \left[\Delta [Fe]_i + \Delta [Fe]_{i-1} + \Delta [Cu]_i + \Delta [Cu]_{i-1} + \Delta APs_{i-1} + \Delta BPs_i \right] \end{aligned}$$

d'où l'erreur relative :

$$\frac{\Delta \left(D \sum_j [C_j] \right)}{D \sum_j [C_j]} = \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta [Fe]_i + \Delta [Fe]_{i-1} + \Delta [Cu]_i + \Delta [Cu]_{i-1} + \Delta APs_{i-1} + \Delta BPs_i}{\sum_j [C_j]}$$

Les valeurs moyennes sont :

$$D \approx 100 \text{ m}^3/h$$

$$\Delta D = \pm 5 \text{ m}^3/h$$

$$[Fe]_i - [Fe]_{i-1} \approx 5 \text{ g/l}$$

$$\Delta [Fe]_i = \Delta [Fe]_{i-1} \approx \pm 0,2 \text{ g/l}$$

$$[Cu]_i - [Cu]_{i-1} \approx 0,5 \text{ g/l}$$

$$\Delta [Cu]_i = \Delta [Cu]_{i-1} \approx \pm 0,1 \text{ g/l}$$

$$Ps_i \approx Ps_{i-1} \approx 30 \text{ g/l}$$

$$\Delta Ps_i = \Delta Ps_{i-1} \approx \pm 0,5 \text{ g/l}$$

$$Fe_{p_{i-1}} \approx Fe_{p_i} \approx 30 \cdot 10^{-2}$$

$$Fe_c \approx 6 \cdot 10^{-2}$$

$$Cu_{p_{i-1}} \approx Cu_{p_i} \approx 10^{-2}$$

$$Cu_c \approx 0,5 \cdot 10^{-2}$$

d'où $A = B \approx 3,6$ et $\sum_j [C_j] \approx 220$

On a donc :

$$\frac{\Delta(D \sum_j [C_j])}{D \sum_j [C_j]} = 0,1 + \frac{7,2}{220}$$

Nous voyons effectivement que l'erreur relative la plus importante est celle découlant de la mesure du débit, d'où la nécessité d'ajuster en priorité cette valeur.

Cependant, un calcul plus précis tenant compte des erreurs faites lors de l'analyse des Matières solides (Précipité et Calcine) donne :

$$\frac{\Delta(D \sum_j [C_j])}{D \sum_j [C_j]} = 0,1 + \frac{7,2}{220} + \frac{18}{220}$$

Nous pouvons constater que l'erreur relative des analyses sur solide est légèrement plus faible que celle sur le débit. Mais ces valeurs sont difficilement ajustables. Et bien que leur importance soit grande sur un bilan massique, ces valeurs (en particulier Fe et Cu) ne sont plus utilisées dans la suite de l'étude.

A N N E X E 2

DEFINITION ET INTERPRETATION DU TEST DE FISHER-SNEDECOR

La validité de toute régression doit absolument être vérifiée. Pour cela, il existe un certain nombre de tests dont les plus utilisés sont les tests d'hypothèses. Ces tests sont basés sur une analyse de la variance.

Rappelons auparavant quelques définitions : [16] , [21]

Soit un modèle multivariable entre une variable à expliquer Y et m variables explicatives X_1, \dots, X_m , défini par :

$$Y = a_0 + a_1 X_1 + \dots + a_m X_m + \epsilon$$

pour lequel les coefficients a_0, \dots, a_m sont à calculer au moyen d'une régression multiple, à partir de n observations des variables Y et X_1, \dots, X_m .

Pour le calcul des a_i , on pose :

$$\underline{Y} = X \underline{a} + \underline{\epsilon}$$

où Y =
$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ Y_n \end{bmatrix}$$

Vecteur colonne des n observations de la variable à expliquer.

$$X = \begin{bmatrix} 1 & x_{11} & x_{12} & \dots & x_{1m} \\ 1 & x_{21} & x_{22} & \dots & x_{2m} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & x_{n1} & x_{n2} & \dots & x_{nm} \end{bmatrix}$$

Matrice $n \times (m + 1)$ des n observations des m variables indépendantes, plus une variable supplémentaire (= 1, pour le calcul de a_0)

$$\underline{a} = \begin{bmatrix} a_0 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ a_m \end{bmatrix}$$

Vecteur colonne des $m + 1$ coefficients

L'estimation des valeurs des coefficients permettant de minimiser l'erreur entre les valeurs observées de Y et les valeurs calculées conduit à la résolution du système d'équations suivant.

$$\underline{\hat{a}} = (X^T X)^{-1} X^T \underline{Y}$$

$$\text{où } \underline{\hat{a}} = \begin{bmatrix} \cdot \\ a_0 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ a_m \end{bmatrix}$$

est le vecteur des coefficients estimés

d'où le modèle obtenu par régression:

$$\underline{Yc} = X \underline{\hat{a}}$$

$$\underline{Yc} = \begin{bmatrix} Yc \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ Yc_n \end{bmatrix}$$

Valeurs calculées de Y par la régression.

On définit ensuite le pourcentage de variance expliquée ou coefficient de corrélation multiple par :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - y_{c_i})^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}$$

; \bar{y} est la moyenne des y_i

1 - Test de la régression

Nous testons la validité de l'hypothèse H_0 pour laquelle l'ensemble des coefficients $\hat{a}_0, \dots, \hat{a}_m$ est nul.

On calcule le rapport F :

$$F_{m;n-m-1} = \frac{\sum_{i=1}^n (yc_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - yc_i)^2} \cdot \frac{n-m-1}{m} = \frac{R^2}{1-R^2} \frac{n-m-1}{m}$$

et est appelé F de FISHER-SNEDECOR.

La valeur calculée de F est comparée à la valeur $F_{m;n-m-1}(\alpha)$ consignée dans des tables pour plusieurs valeurs de α . Ceci permet de déterminer la validité de la régression.

On trouvera ci-joint, un exemplaire des tables du F de FISHER pour $\alpha = 0,05$.

Interprétation

Si F calculé $< F_{m;n-m-1}(\alpha)$: l'hypothèse H_0 est acceptée avec une probabilité d'erreur $< \alpha$. La régression n'est pas significative.

Si F calculé $> F_{m;n-m-1}(\alpha)$: l'hypothèse H_0 est rejetée avec une probabilité d'erreur $\leq \alpha$. La régression est significative.

2 - Test d'une partie du modèle

Il est possible de tester l'hypothèse H_0 appliquée à une partie du modèle. On teste alors l'hypothèse H_1 qu'une partie des \hat{a}_i est nulle.

On pose $\hat{\underline{a}} = \begin{bmatrix} \hat{a}' \\ \vdots \\ \hat{a}'' \end{bmatrix}$ où $\hat{\underline{a}}''$ est le vecteur des p coefficients à tester.

Alors le calcul de \underline{a} peut être écrit :

$$\begin{aligned} \underline{a} &= \begin{bmatrix} \vdots \\ \underline{a}' \\ \vdots \\ \underline{a}'' \\ \vdots \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} X_1^T X_1 & \vdots & X_1^T X_2 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ X_2^T X_1 & \vdots & X_2^T X_2 \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} X_1^T \underline{Y} \\ \vdots \\ X_2^T \underline{Y} \\ \vdots \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} C_{11} & \vdots & C_{12} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ C_{21} & \vdots & C_{22} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} X_1^T \underline{Y} \\ \vdots \\ X_2^T \underline{Y} \\ \vdots \end{bmatrix} \end{aligned}$$

Par transposition :

$$F_{p; n - m - 1} = \frac{\hat{\underline{a}}''^T \cdot C_{22}^{-1} \hat{\underline{a}}''}{\sum_{i=1}^n (y_i - y_{c_i})^2} \cdot \frac{n - m - 1}{p}$$

L'interprétation pour un ensemble de coefficients est la même que pour le cas de la régression totale, seul le nombre de degrés de liberté est modifié.

3 - Test d'un seul coefficient

Le test de l'hypothèse H_2 qu'un seul coefficient a_j est nul se déduit des équations précédentes.

$$F_{1; n - m - 1} = \frac{\hat{a}_j^2}{C_{jj}} \cdot \frac{n - m - 1}{\sum_{i=1}^n (y_i - y_{c_i})^2}$$

Remarque : Dans ce cas :

$$F_{1; n - m - 1} = t_{n - m - 1}^2$$

où t est le test de STUDENT.

4 - Application

Le test de l'hypothèse H_0 permet de vérifier la signification de la régression effectuée. Mais dans le cas de modèles ayant un grand nombre de variables explicatives, il est utile de vérifier que toutes

les variables sont effectivement significatives par le test de l'hypothèse H_2 .

Dans notre cas précis où nous ne connaissons pas a priori la forme des non linéarités, il est facile de vérifier la validité de la forme polynômiale en testant simultanément les hypothèses H_1 pour l'ensemble des coefficients du polynôme et H_2 pour chacun des coefficients.

En effet, nous pouvons résumer les résultats possibles dans le tableau suivant :

		<u>Hypothèse H_1 sur le polynôme</u>	
		<u>Acceptée</u>	<u>Refusée</u>
<u>Hypothèse H_2 sur chaque coefficient</u>	<u>Acceptée</u>	La variable n'est pas significative quelle que soit la forme du modèle adoptée : linéaire au polynômiale. 1	La variable n'est pas significative sous forme linéaire, mais l'est sous forme polynômiale. 2
	<u>Refusée</u>	3 La variable n'est pas significative sous forme polynômiale, mais l'est sous forme linéaire.	4 la variable est significative à la fois sous forme linéaire et polynômiale.

Remarques :

(1) Ce cas ne doit pas se produire si on a déjà sélectionné les variables ou bien, la non linéarité, si elle existe, n'est pas identifiable par un polynôme.

(2) Justifie l'existence d'une non-linéarité identifiable sous forme polynômiale.

(4) On conserve la forme la plus significative.

VALEURS CRITIQUES DE LA STATISTIQUE F($\alpha = 5\%$)

$v_1 \rightarrow$	nombre de d.d.l. du numérateur																							
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	12	15	20	24	30	40	48	60	120	∞				
1	161.4	199.5	215.7	224.6	230.2	234.0	236.8	238.9	240.5	241.9	243.9	245.9	248.0	249.0	250.1	251.1	251.7	252.2	253.2	254.4				
2	18.51	19.00	19.16	19.25	19.30	19.33	19.35	19.37	19.38	19.40	19.41	19.43	19.45	19.45	19.46	19.47	19.47	19.48	19.49	19.50				
3	10.13	9.552	9.277	9.117	9.013	8.941	8.887	8.845	8.812	8.785	8.745	8.703	8.660	8.638	8.617	8.594	8.583	8.572	8.549	8.531				
4	7.709	6.944	6.591	6.388	6.256	6.163	6.094	6.041	5.999	5.964	5.912	5.858	5.802	5.774	5.746	5.717	5.702	5.688	5.658	5.628				
5	6.608	5.786	5.409	5.192	5.050	4.950	4.876	4.818	4.772	4.735	4.678	4.619	4.558	4.527	4.496	4.464	4.448	4.431	4.398	4.365				
6	5.987	5.143	4.757	4.534	4.387	4.284	4.207	4.147	4.099	4.060	4.000	3.938	3.874	3.841	3.808	3.774	3.757	3.740	3.705	3.665				
7	5.591	4.737	4.347	4.120	3.971	3.866	3.787	3.726	3.677	3.636	3.575	3.511	3.444	3.410	3.376	3.340	3.322	3.304	3.267	3.230				
8	5.318	4.459	4.066	3.838	3.687	3.581	3.500	3.438	3.388	3.347	3.284	3.218	3.150	3.115	3.079	3.043	3.024	3.005	2.967	2.928				
9	5.117	4.256	3.863	3.633	3.482	3.374	3.293	3.230	3.179	3.137	3.073	3.006	2.936	2.900	2.864	2.826	2.807	2.787	2.747	2.707				
10	4.965	4.103	3.708	3.478	3.326	3.217	3.135	3.072	3.020	2.978	2.913	2.845	2.774	2.737	2.700	2.661	2.641	2.621	2.580	2.538				
11	4.844	3.982	3.587	3.357	3.204	3.095	3.012	2.948	2.896	2.854	2.788	2.719	2.646	2.609	2.570	2.531	2.510	2.490	2.448	2.404				
12	4.747	3.885	3.490	3.259	3.106	2.996	2.913	2.849	2.796	2.753	2.687	2.617	2.544	2.505	2.466	2.426	2.405	2.384	2.341	2.296				
13	4.667	3.806	3.410	3.179	3.025	2.915	2.832	2.767	2.714	2.671	2.604	2.533	2.459	2.420	2.380	2.339	2.318	2.297	2.252	2.206				
14	4.600	3.739	3.344	3.112	2.958	2.848	2.764	2.699	2.646	2.602	2.534	2.463	2.388	2.349	2.308	2.266	2.245	2.223	2.179	2.131				
15	4.543	3.682	3.287	3.056	2.901	2.790	2.707	2.641	2.588	2.544	2.475	2.403	2.327	2.288	2.247	2.204	2.182	2.160	2.114	2.066				
16	4.494	3.634	3.239	3.007	2.852	2.741	2.657	2.591	2.538	2.493	2.425	2.352	2.276	2.235	2.194	2.151	2.128	2.106	2.059	2.010				
17	4.451	3.591	3.197	2.965	2.810	2.699	2.614	2.548	2.494	2.450	2.381	2.308	2.230	2.190	2.148	2.104	2.081	2.058	2.011	1.960				
18	4.414	3.555	3.160	2.928	2.773	2.661	2.577	2.510	2.456	2.412	2.342	2.269	2.191	2.150	2.107	2.063	2.040	2.017	1.968	1.917				
19	4.381	3.522	3.127	2.895	2.740	2.628	2.543	2.477	2.423	2.378	2.308	2.234	2.155	2.114	2.071	2.026	2.003	1.980	1.930	1.878				
20	4.351	3.493	3.098	2.866	2.711	2.599	2.514	2.447	2.393	2.348	2.278	2.203	2.124	2.082	2.039	1.994	1.970	1.946	1.895	1.843				
21	4.325	3.467	3.072	2.840	2.685	2.573	2.488	2.420	2.366	2.321	2.250	2.176	2.096	2.054	2.010	1.964	1.940	1.916	1.866	1.812				
22	4.301	3.443	3.049	2.817	2.661	2.549	2.464	2.396	2.342	2.297	2.226	2.151	2.071	2.028	1.984	1.938	1.914	1.889	1.838	1.783				
23	4.279	3.422	3.028	2.795	2.640	2.528	2.442	2.375	2.320	2.275	2.204	2.128	2.048	2.005	1.960	1.914	1.889	1.865	1.813	1.757				
24	4.260	3.403	3.009	2.776	2.621	2.508	2.423	2.355	2.300	2.255	2.183	2.108	2.027	1.984	1.938	1.892	1.867	1.842	1.790	1.733				
25	4.242	3.385	2.991	2.759	2.603	2.490	2.405	2.337	2.282	2.236	2.165	2.089	2.007	1.964	1.919	1.872	1.847	1.822	1.769	1.711				
30	4.171	3.316	2.922	2.690	2.534	2.420	2.334	2.266	2.211	2.165	2.092	2.015	1.932	1.887	1.841	1.792	1.766	1.740	1.689	1.622				
40	4.085	3.232	2.839	2.606	2.449	2.336	2.249	2.180	2.124	2.077	2.003	1.924	1.839	1.793	1.744	1.693	1.665	1.637	1.577	1.509				
60	4.001	3.150	2.758	2.525	2.368	2.254	2.166	2.097	2.040	1.993	1.917	1.836	1.748	1.700	1.649	1.594	1.564	1.534	1.467	1.389				
80	3.961	3.111	2.719	2.486	2.329	2.214	2.127	2.057	1.999	1.952	1.876	1.793	1.703	1.654	1.602	1.545	1.513	1.482	1.410	1.322				
120	3.920	3.072	2.680	2.447	2.290	2.175	2.087	2.016	1.959	1.910	1.834	1.750	1.659	1.608	1.554	1.495	1.462	1.429	1.352	1.254				
∞	3.841	2.996	2.605	2.372	2.214	2.099	2.010	1.938	1.880	1.831	1.752	1.666	1.570	1.517	1.459	1.394	1.356	1.318	1.221	1.000				

Exemple : pour $v_1 = 10$, $v_2 = 17$, on a : $P(F \geq 2.450) = 5\%$

A N N E X E 3

TABLEAUX DES COEFFICIENTS DES MODELES DE PRECIPITATION FER

I - Modèle de précipitation Fer du type :

$$[Fe^{2+}]_S = [Fe^{2+}]_E + \frac{1}{1 + b_o Z} \sum_{i=1}^n (b_i X_i + c_i X_i^2 + d_i X_i^3 + cte)$$

- Sans la variable $[Cu]_E$:

		Degré	T _E	pH _E	[Fe ²⁺] _E	pH _S	Termes ct	b _o
<u>R 42</u>	<u>Coefficients</u>	1	0,0834	53,6135	64,6701	53,6304	-358,6156	0,0125
		2		-32,7225	- 5,2613	-14,6718		
		3		6,2533	0,1392	1,3093		
	<u>F Total</u>	F _{10;53} = 10,55						
<u>% Var. expl.</u>	R ² = 66,6%							
<u>R 43</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,1425	227,1775	-29,7277	-47,1235	-101,4297	0,0611
		2		-65,2047	2,9435	12,7777		
		3		6,2453	-0,0968	-1,1865		
	<u>F. Total</u>	F _{10;53} = 13,65						
<u>% Var. Expl.</u>	R ² = 72%							
<u>R 44</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,0289	72,5017	-0,0226	-48,9175	-17,3766	-0,0269
		2		-22,3895	-0,2149	13,5712		
		3		2,3053	0,0265	-1,2565		
	<u>F. Total</u>	F _{10;53} = 26,44						
<u>% Var. Expl.</u>	R ² = 83,3%							
<u>R 45</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,0458	-28,6154	-0,9323	-78,5961	122,5354	0,01
		2		9,0773	-0,2442	23,877		
		3		-0,9505	-0,0354	-2,2780		
	<u>F. Total</u>	F _{10;53} = 29,42						
<u>% Var. Expl.</u>	R ² 84,7%							
<u>R 46</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,024	-30,9010	-0,3060	-8,8940	43,6286	-0,001
		2		9,4872	0,0541	3,2634		
		3		-0,9652	-0,0165	-0,3981		
	<u>F. Total</u>	F _{10;53} = 24,51						
<u>% Var. Expl.</u>	R ² = 82,2%							

- Avec la variable $[Cu]_E$:

		$[Cu]_E$						
		Degré	T_E	pH_E	$[Fe^{2+}]_E$	pH_S	Terme ct	$\frac{b}{a}$
<u>R 42</u>	<u>Coefficients</u>	1	0,0537	48,6944	49,0377	25,7799	-2,5205	0,0125
		2		-29,5636	-3,9373	-6,4171		
		3		5,6266	0,1019	0,5024	-258,1015	
	<u>F. Total</u>	$F_{11,52} = 10,04$						
<u>% Var. Expl.</u>	$R^2 = 68\%$							
<u>R 43</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,1414	178,1396	-29,8913	-76,1731	1,1584	0,0322
		2		-51,3107	2,9402	21,9817		
		3		4,9455	-0,0965	-2,1495	-14,5596	
	<u>F. Total</u>	$F_{11,52} = 12,41$						
<u>% Var. Expl.</u>	$R^2 = 72,4\%$							
<u>R 44</u>	<u>Coefficient</u>	1	-0,0298	75,8557	0,0500	-48,5756	0,1137	-0,0255
		2		-23,4230	-0,2095	13,4985		
		3		2,4112	0,0261	-1,2526	-21,5041	
	<u>F. Total</u>	$F_{11,52} = 23,62$						
<u>% Var. Expl.</u>	$R^2 = 83,3\%$							
<u>R 45</u>	<u>Coefficients</u>	1	-0,0473	-20,8735	-1,0258	-70,5827	0,1891	0,0100
		2		6,6491	0,2794	20,6837		
		3		-0,6985	-0,0399	-2,0163	105,8497	
	<u>F. Total</u>	$F_{11,52} = 26,49$						
<u>% Var. Expl.</u>	$R^2 = 84,9\%$							
<u>R 46</u>	<u>Coef</u>	1	-0,0717	-57,7919	-1,4822	-103,5865	1,3176	0,0100
		2		17,7414	0,5807	37,8008		
		3		-1,8015	-0,1207	-4,5718	161,3703	
	<u>F. Total</u>	$F_{11,52} = 24,23$						
<u>% Var. Expl.</u>	$R^2 = 83,7\%$							

II - Modèle de précipitation du type :

$$[Fe^{2+}]_S = [Fe^{2+}]_E + \frac{pH_E \cdot pH_S}{Z} \cdot [Cu]_E \cdot \left[a [Fe^{2+}]_E + b [Fe^{2+}]_E^2 + c [Fe^{2+}]_E^3 + cte \right]$$

<u>Coefficients</u>	<u>R 42</u>	<u>R 43</u>	<u>R 44</u>	<u>R 45</u>
<u>a</u>	-1,4325	-0,1085	-0,2209	0,0215
<u>b</u>	0,2144	0,0224	0,1286	0,0697
<u>c</u>	-0,0075	-0,0010	-0,0150	-0,0111
<u>Terme ct</u>	0,5330	5,6250	0,9625	0,1021
<u>F. Total 3,60</u>	91,36	4,46	29	23,22
<u>% Var. expl.</u>	85,4%	18,2%	61,3%	54,6%

ANNEXE 4

TABLEAUX DES COEFFICIENTS DES MODELES Zn/Fe ET TEMPS DE FILTRATION

	<u>Variabes explicatives</u>	<u>Degré du polynôme</u>	<u>Coefficients</u>	<u>F_{1,63} par variable</u>	<u>F du polynôme</u>	<u>F de la régression</u>	<u>% de variance expliquée</u>
R.42	[Fe ²⁺] ₄₂	1	-0,9128	12,61	35,80	<u>7,56</u>	76%
		2	0,0548	17,07			
	pH ₄₂	1	0,4556	13,90	13,90		
	[Fe ²⁺] ₂₂	1	-30,1079	3,57	12,08		
		2	2,4136	3,44			
	3	-0,0644	3,44				
	pH ₂₂	1	-0,2947	6,79	6,79		
	Terme constant		128,3054				
R.43	pH ₄₃	1	0,0738	12,94	12,94	<u>10,53</u>	74,8%
	ΔFe ₄₃	1	-0,1811	0,64	3,77		
		2	0,0337	0,89			
		3	-0,0019	1,03			
	[Fe ²⁺] ₄₂	1	-0,6024	2,41	8,32		
		2	-0,0746	3,34			
		3	0,0030	4,35			
T ₄₂	1	-0,0921	6,36	5,58			
	2	0,0006	6,73				
	pH ₂₂	1	-0,0457	7,85	7,85		
	Terme constant		2,1847				
R.44	[Fe ²⁺] ₄₄	1	-0,0712	2,91	3,32	17,46	80%
		2	0,0288	2,07			
		3	-0,0042	2,30			
		pH ₄₄	1	0,0715	24,03	24,03	
	[Fe ²⁺] ₄₃	1	0,0050	0,04	3,03	11,76	
		2	0,0053	0,36			
		3	-0,0009	0,58			
	ΔFe ₄₃	1	-0,1938	1,55	6,37		
		2	0,0243	0,98			
		3	-0,0009	0,52			
pH ₄₂	1	14,6248	4,87	3,05			
	2	-4,2555	4,65				
	3	0,411	4,42				
[Fe ²⁺] ₂₂	1	-0,6844	0,18	8,66			
	2	0,0666	0,25				
	3	-0,0021	0,34				
	Terme constant		-14,0591				

Variables explicatives	Degré du polynôme	Coefficients	F _{i,0j} par variable	F du polynôme	F de la régression	% de variance expliquée
pH ₄₅	1	0,3073	0,01	8,31	18,45	87,40
	2	-0,0028	0,01			
	3	-0,0081	0,01			
pH ₄₄	1	-4,7330	5,12	6,52		
	2	1,4815	5,41			
	3	-0,1524	5,60			
[Fe ²⁺] ₄₃	1	-0,0509	9,07	3,13		
	2	0,0165	7,91			
	3	-0,0017	7,01			
ΔFe ₄₃	1	-0,1537	1,81	5,78		
	2	0,0194	1,15			
	3	-0,0008	0,65			
[Fe ²⁺] ₄₂	1	0,0575	0,02	6,46		
	2	-0,1060	0,28			
	3	0,0296	0,73			
[Fe ²⁺] ₂₂	1	-0,7257	0,32	10,95		
	2	0,0698	0,44			
	3	-0,0022	0,58			
Terme constant		7,3285				
pH ₄₆	1	12,4138	5,32	2,00	26,36	860
	2	-4,1142	5,12			
	3	0,4531	4,90			
[Fe ²⁺] ₄₆	1	0,1733	6,97	5,44		
	2	-0,0945	4,67			
	3	0,0138	2,46			
[Fe ²⁺] ₄₅	1	-0,1176	7,05	2,69		
	2	0,0076	7,16			
	3	-0,0106	6,23			
pH ₄₅	1	0,2797	3,74	4,66		
	2	-0,0376	2,88			
pH ₄₄	1	-4,3872	4,80	4,28		
	2	1,4087	5,30			
	3	-0,1494	5,07			
[Fe ²⁺] ₄₃	1	-0,0676	14,61	5,78		
	2	0,0241	16,38			
	3	-0,0026	16,80			
[Fe ²⁺] ₂₂	1	-2,0014	2,50	16,65		
	2	0,1754	2,89			
	3	-0,0051	3,32			
pH ₂₂	1	0,2048	0,30	6,34		
	2	-0,1216	0,34			
	3	0,0254	0,48			
ΔFe ₄₃	1	-0,3925	9,48	10,34		
	2	0,0556	7,55			
	3	-0,0026	6,06			
Terme constant		0				

	<u>Variables explicatives</u>	<u>Degré du polynôme</u>	<u>Coefficients</u>	<u>F_{1,63} par Variable</u>	<u>F pour le polynôme</u>	<u>F de la régression</u>	<u>% de variance expliquée</u>
<u>Temps de Filtration</u>	pH ₄₆	1	300,4811	0,95	9,60	15,48	77,6%
		2	-125,5169	1,22			
		3	16,7565	1,44			
	pH ₄₅	1	-466,0763	4,34	4,09		
		2	137,6393	4,01			
		3	- 13,3755	3,67			
	pH ₄₄	1	-230,0883	1,31	2,14	11,05	
		2	71,0729	1,33			
		3	- 7,3406	1,38			
	pH ₄₂	1	-1756,4305	13,26	4,65		
		2	519,8071	13,24			
		3	- 51,1599	13,22			
	[Fe ²⁺] ₄₂	1	21,0481	1,19	3,15		
		2	- 1,9697	0,94			
		3	0,0597	0,72			
Terme constant			2449,4109				

Remarques :

Nous pouvons constater que pour certaines variables, nous avons conservé une forme polynômiale bien que le test de FISHER apparaisse significatif pour la forme linéaire.

Ceci est dû au fait que des modèles établis à partir des formes linéaires de ces variables s'avèrent très nettement moins précis que ceux contenant des formes non linéaires. De plus, dans ce cas là les tests de FISHER sont peu significatifs.

Cette relative instabilité des calculs, et des tests par voie de conséquence, est un phénomène bien connu en analyse de données, provenant des calculs de régression entre des variables qui ne sont pas absolument linéairement indépendantes.

Nous remarquons effectivement que ce problème s'accroît au fur et à mesure que l'analyse progresse le long de la cascade de réacteurs pour être relativement sensible sur les réacteurs du bout de chaîne (R 46 principalement).

De plus, compte tenu de la forme des modèles (polynômes du 3^e degré) il est nécessaire de garder 4 chiffres significatifs pour les coefficients, afin d'obtenir des résultats à $\pm 10^{-2}$ (en particulier pour les rapports Zn/Fe).

ANNEXE 5

CORRELATION

	Z/F 46	Z/F 45	Z/F 44	Z/F 43	Z/F 42	MF2 46	MF3 46	PH 46	LF3 45	MF2 45	PH 45	MF3 44	MF2 44	PH 44	DIF 44
	LF3 43	MF2 43	PH 43	DIF 43	MF3 42	MF2 42	PH 42	DIF 42	TE 42	MF3 22	MF2 22	PH 22	TFILTR		
Z/F 46	1.000														
Z/F 45	0.809	1.000													
Z/F 44	0.730	0.450	1.000												
Z/F 43	0.500	0.572	0.621	1.000											
Z/F 42	-0.094	-0.049	0.062	0.262	1.000										
MF2 46	-0.370	-0.470	-0.469	-0.155	0.067	1.000									
MF3 46	-0.279	-0.205	-0.247	-0.067	-0.045	0.350	1.000								
PH 46	0.190	0.335	0.293	0.220	0.045	-0.197	-0.676	1.000							
MF3 45	-0.420	-0.534	-0.444	-0.193	0.150	0.645	0.240	-0.190	1.000						
MF2 45	-0.409	-0.403	-0.546	-0.225	0.181	0.491	0.274	-0.194	0.634	1.000					
PH 45	0.504	0.670	0.630	0.322	-0.143	-0.523	-0.509	0.359	-0.569	-0.553	1.000				
MF3 44	-0.505	-0.612	-0.697	-0.333	0.210	0.740	0.416	-0.273	0.613	0.071	-0.604	1.000			
MF2 44	-0.427	-0.513	-0.553	-0.277	0.324	0.736	0.100	-0.205	0.526	0.902	-0.530	0.002	1.000		
PH 44	0.305	0.500	0.690	0.223	-0.070	-0.462	-0.247	0.167	-0.410	-0.551	0.615	-0.465	-0.590	1.000	
DIF 44	-0.122	-0.104	-0.135	-0.130	0.440	0.119	-0.020	0.032	0.106	0.230	-0.239	0.170	0.350	-0.214	1.000
MF3 43	-0.179	-0.250	-0.245	-0.360	0.425	0.327	-0.036	-0.016	0.206	0.467	-0.276	0.307	0.579	-0.315	0.655
MF2 43	-0.324	-0.444	-0.442	-0.259	0.457	0.550	0.100	-0.119	0.407	0.725	-0.469	0.663	0.057	-0.509	0.703
PH 43	0.309	0.330	0.259	0.512	-0.067	-0.130	0.105	-0.100	-0.124	-0.152	0.161	-0.095	-0.227	0.164	-0.332
DIF 43	0.243	0.375	0.301	0.400	0.175	-0.441	0.156	-0.151	-0.197	-0.477	0.325	-0.364	-0.446	0.257	-0.292
MF3 42	-0.255	-0.333	-0.342	-0.119	0.314	-0.040	0.057	-0.150	0.146	0.022	-0.253	0.279	0.123	-0.317	-0.041
MF2 42	-0.209	-0.164	-0.156	0.057	0.620	0.226	0.243	-0.249	0.270	0.370	-0.252	0.410	0.542	-0.329	0.591
PH 42	0.000	0.061	0.120	0.125	0.243	-0.000	-0.322	0.160	0.000	-0.030	0.131	-0.100	-0.090	0.272	0.007
DIF 42	0.329	0.321	0.209	0.133	-0.606	-0.175	-0.107	0.200	-0.321	-0.296	0.306	-0.450	-0.490	0.267	-0.529
TE 42	-0.413	-0.344	0.157	0.351	-0.140	-0.093	0.292	0.170	1.000						
MF3 22	-0.119	-0.215	-0.220	-0.110	0.359	-0.072	-0.032	-0.073	0.100	0.024	-0.143	0.173	0.096	-0.180	-0.017
MF2 22	0.332	0.372	0.209	0.317	-0.430	-0.072	-0.009	0.059	-0.247	-0.076	0.242	-0.309	-0.237	0.083	-0.256
PH 22	-0.035	-0.207	-0.105	-0.513	-0.376	-0.070	0.044	-0.292	0.005	-0.069	-0.190	0.036	0.017	-0.090	0.156
TFILTR	-0.310	-0.305	-0.320	-0.317	-0.213	0.101	0.600	-0.626	0.130	0.112	-0.250	0.197	0.055	-0.272	-0.167

Matrice de corrélation complète reliant les rapports

Zn/Fe de chaque réacteur aux paramètres représentatifs du fonctionnement .

TRANSFORMATION

	Z/F 46 IF3 43	Z/F 45 IF2 43	Z/F 44 PH 43	Z/F 43 DIF 43	Z/F 42 IF3 42	MF2 46 IF2 42	IF3 44 PH 42	PH 46 DIF 42	IF3 45 TE 42	MF2 45 IF3 22	PH 45 MF2 22	IF3 44 PH 22	MF2 44 IFILTR	PH 44	DIF 44
Z/F 46	1.002														
Z/F 45	0.376	1.002													
Z/F 44	0.340	0.428	1.002												
Z/F 43	0.259	0.256	0.332	1.001											
Z/F 42	0.277	0.271	0.277	0.304	1.001										
MF2 46	0.262	0.308	0.273	0.260	0.277	1.002									
IF3 46	0.230	0.263	0.260	0.226	0.299	0.378	1.001								
PH 46	0.277	0.264	0.237	0.264	0.279	0.256	0.237	1.001							
IF3 45	0.262	0.347	0.276	0.274	0.238	0.361	0.321	0.241	1.001						
MF2 45	0.346	0.295	0.338	0.277	0.264	0.484	0.282	0.226	0.364	1.002					
PH 45	0.238	0.335	0.293	0.306	0.237	0.254	0.237	0.238	0.394	0.259	1.001				
IF3 44	0.272	0.321	0.343	0.237	0.277	0.355	0.361	0.224	0.333	0.419	0.263	1.002			
MF2 44	0.306	0.264	0.308	0.252	0.244	0.351	0.239	0.212	0.348	0.467	0.256	0.355	1.002		
PH 44	0.330	0.334	0.396	0.265	0.269	0.368	0.294	0.209	0.267	0.292	0.275	0.415	0.292	1.001	
DIF 44	0.269	0.267	0.234	0.206	0.295	0.295	0.269	0.271	0.201	0.226	0.162	0.233	0.228	0.245	1.001
IF3 43	0.269 1.002	0.271	0.336	0.328	0.308	0.294	0.263	0.216	0.284	0.291	0.220	0.363	0.417	0.259	0.327
MF2 43	0.323 0.425	0.299 1.001	0.267	0.241	0.300	0.314	0.299	0.224	0.329	0.325	0.288	0.329	0.470	0.273	0.376
PH 43	0.239 0.263	0.252 0.239	0.360 1.001	0.260	0.268	0.183	0.187	0.239	0.167	0.263	0.216	0.206	0.268	0.276	0.238
DIF 43	0.237 0.290	0.335 0.267	0.265 0.291	0.269 1.000	0.295	0.288	0.296	0.226	0.294	0.271	0.295	0.233	0.276	0.273	0.265
IF3 42	0.226 0.245	0.220 0.252	0.256 0.238	0.271 0.244	0.244 1.001	0.212	0.302	0.303	0.288	0.263	0.269	0.292	0.253	0.212	0.282
MF2 42	0.263 0.337	0.303 0.336	0.222 0.264	0.364 0.297	0.435 0.368	0.260 1.000	0.237	0.213	0.314	0.327	0.277	0.402	0.284	0.302	0.335
PH 42	0.213 0.243	0.226 0.249	0.220 0.162	0.243 0.226	0.239 0.254	0.256 0.238	0.249 1.001	0.194	0.290	0.252	0.244	0.277	0.241	0.238	0.183
DIF 42	0.259 0.310	0.267 0.230	0.244 0.329	0.310 0.306	0.305 0.306	0.262 0.447	0.254 0.220	0.241 1.002	0.271	0.216	0.256	0.333	0.319	0.252	0.291
TE 42	0.227 0.237	0.268 0.245	0.322 0.282	0.277 0.240	0.273 0.233	0.230 0.314	0.244 0.248	0.167 0.240	0.205 1.000	0.277	0.234	0.205	0.168	0.238	0.234
IF3 22	0.314 0.244	0.243 0.258	0.238 0.245	0.224 0.201	0.407 0.354	0.263 0.291	0.304 0.260	0.255 0.241	0.259 0.291	0.264 1.001	0.242	0.233	0.263	0.255	0.239
MF2 22	0.339 0.277	0.363 0.374	0.322 0.325	0.310 0.245	0.370 0.362	0.264 0.368	0.260 0.256	0.174 0.368	0.316 0.241	0.260 0.377	0.271 1.001	0.275	0.366	0.303	0.282
PH 22	0.234 0.241	0.252 0.267	0.307 0.233	0.302 0.237	0.314 0.306	0.252 0.242	0.244 0.237	0.363 0.296	0.264 0.343	0.264 0.323	0.194 0.233	0.256 1.000	0.216	0.245	0.277
IFILTR	0.249 0.216	0.272 0.229	0.277 0.241	0.245 0.264	0.197 0.264	0.272 0.248	0.271 0.267	0.255 0.252	0.241 0.272	0.216 0.212	0.307 0.222	0.284 0.292	0.194 1.001	0.296	0.222

Matrice de couplage complète reliant les rapports

Zn/Fe de chaque réacteur aux paramètres représentatifs du fonctionnement .

CHAPITRE IV

RECHERCHE D'UN FONCTIONNEMENT OPTIMAL

INTRODUCTION

Les premières analyses des courbes Zn/Fe nous ont permis de mettre en valeur un fonctionnement pour lequel les pertes en Zinc sont faibles. Mais nous voyons aussi que ces courbes sont, de manière générale, similaires des courbes de Précipitation du Fer. En effet, nous l'avons montré : de faibles pertes en Zinc correspondent à une faible Précipitation du Fer et inversement.

De plus, si nous comparons l'évolution de la Filtration aux pertes en Zinc, nous avons affaire à une courbe globalement complémentaire de la courbe Zn/Fe correspondante (sur R 46).

D'où la confirmation de l'existence d'un compromis optimum Filtration-Pertes Zinc à rechercher pour une précipitation totale du Fer.

La structure cascade de l'Hydrolyse facilite la résolution par programmation dynamique du problème d'optimisation permettant l'obtention du meilleur compromis Pertes Zinc-Filtration.

IV-1 - POSITION DU PROBLEME

La recherche d'un tel compromis passe par la résolution d'un problème d'optimisation multicritères pour lequel nous donnons la préférence soit à la Filtration, soit aux Pertes Zinc suivant les conditions de marche de l'Hydrolyse.

Rappelons que lors du lavage du Précipité, la quantité d'eau utilisée est limitée puisque recyclée dans le circuit (Un lavage plus important permettrait la récupération d'une plus grande quantité de Zinc). De plus, le temps de lavage (représentatif de la Filtrabilité) est limité par le "stock tampon" du décanteur.

Nous pouvons donc définir un critère de la forme :

$$J = \alpha_1 J_1 + \alpha_2 J_2$$

$$\text{où } \alpha_1 + \alpha_2 = 1$$

J_1 est l'expression du rapport Zn/Fe dans le dernier réacteur (R 46).

J_2 est l'expression du temps de Filtration.

Pratiquement, nous prenons $\alpha_2 \ll \alpha_1$ car les pertes Zinc sont primordiales devant la Filtration.

Le problème peut alors être écrit :

$$(P) \left\{ \begin{array}{l} \text{Min } J = J \left[(x_1, m_1), (x_2, m_2), \dots, (x_n, m_n) \right] \\ \text{sous } x_i = f_i (x_{i-1}, m_{i-1}, m_i, U_i) \quad i = 1 \text{ à } n \end{array} \right.$$

où x_i représente l'état i du système : Concentration Fe^{2+} du réacteur i .

m_i représente le pH dans le réacteur i , qui peut être considéré comme un paramètre car il fait l'objet d'une régulation.

U_i représente la commande du réacteur i : Débit Oxygène
 n = Nbre de réacteur.

IV-2 - RESOLUTION DU PROBLEME

IV-2-1 - Programmation dynamique

Etant donnée la forme additive non linéaire mais réparable sous laquelle se présentent les critères J_1 et J_2 , la résolution du problème (P) par programmation dynamique s'avère la mieux adaptée.

En effet, rappelons les principes généraux de la résolution d'un problème d'optimisation quelconque par programmation dynamique. [3] , [25].

Soit un processus de décision décomposable en n étapes (fig. IV-1), défini par :

- J : un critère à optimiser tel que :

$$J = \sum_{i=1}^n R_i = \sum_{i=1}^n R_i(x_{i-1}, u_i) \quad (1)$$

où :

U_i est la commande à l'étape i

x_{i-1} est l'entrée de l'étape i ou la sortie de l'étape $i-1$

- Une équation d'état définie pour l'étape i par :

$$x_i = t_i(x_{i-1}, U_i) \quad i = 1 \text{ à } n \quad (2)$$

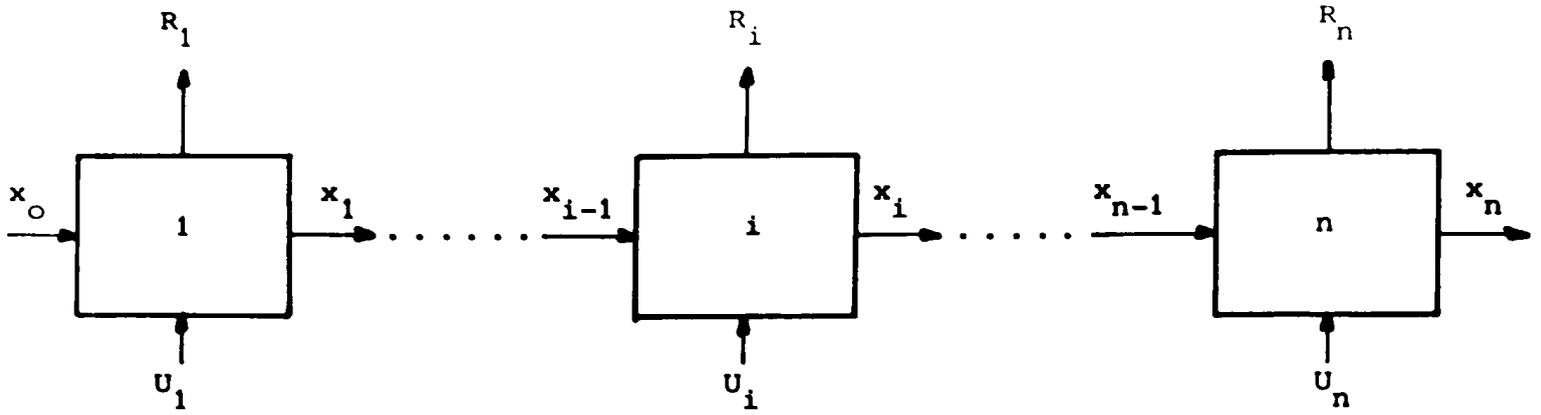


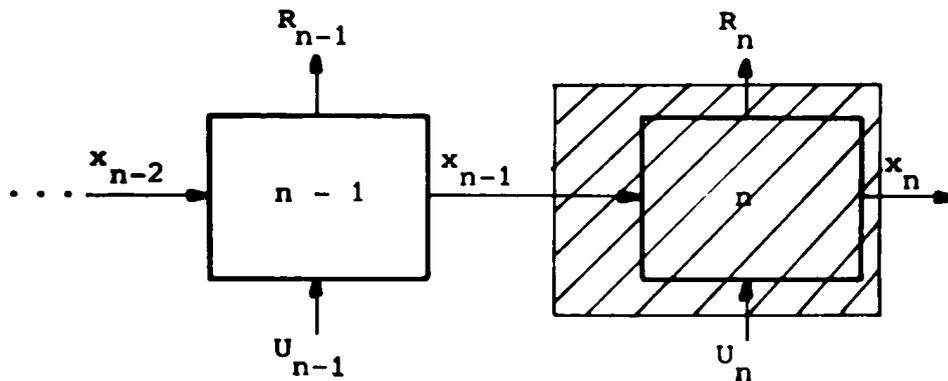
Fig.IV-1

La structure additive du critère permet par application du principe d'optimalité de BELLMAN, la résolution pas à pas du problème $\text{opt} \sum_{i=1}^n R_i$ en minimisant respectivement R_n , puis R_{n-1}, \dots enfin R_1 .

Nous cherchons effectivement à résoudre :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Optimum } J = R_1(x_0, U_1) + R_2(x_1, U_2) + \dots + R_n(x_{n-1}, U_n). \\ \quad U_i \\ \text{sous } x_i = (t_i x_{i-1}, U_i). \end{array} \right.$$

Considérons le sous-problème défini par la dernière étape : $i = n$



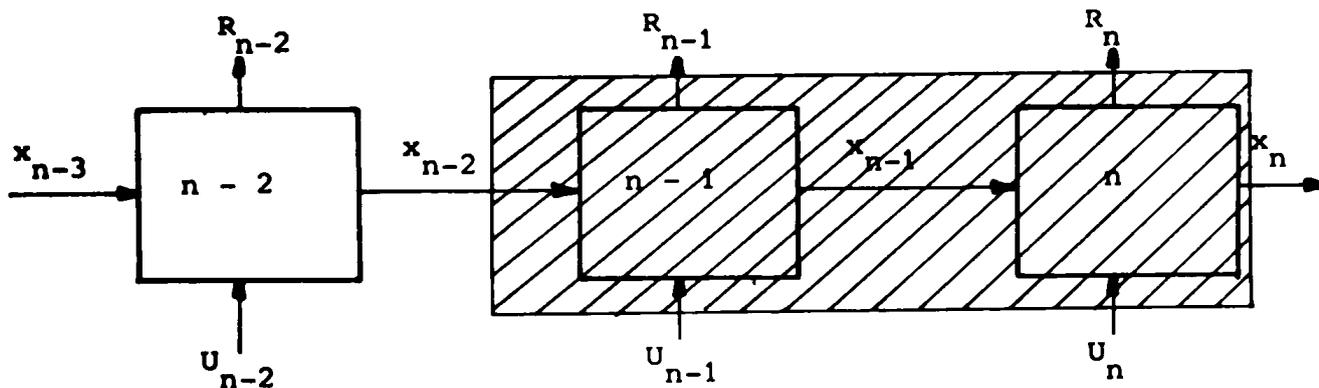
Si l'entrée x_{n-1} de l'étape n est connue, alors d'après le principe d'optimalité, la recherche de l'optimum de R_n nous donne U_n . Donc indépendamment des autres étapes, U_n peut être trouvée telle que $R_n(x_{n-1}, U_n)$ soit un optimum pour l'entrée x_{n-1} et noté f_n^* .

Nous avons :

$$f_n^*(x_{n-1}) = \underset{U_n}{\text{opt}} \left[R_n(x_{n-1}, u_n) \right] \quad (3)$$

Or cette équation donne l'optimum pour une entrée x_{n-1} donnée.

Donc, si nous considérons le sous-problème défini par les deux dernières étapes, f_{n-1}^* est l'optimum pour ce problème, fonction de l'entrée x_{n-2} .



Nous avons :

$$f_{n-1}^*(x_{n-2}) = \underset{U_{n-1}, U_n}{\text{opt}} \left[R_{n-1}(x_{n-2}, U_{n-1}) + R_n(x_{n-1}, u_n) \right] \quad (4)$$

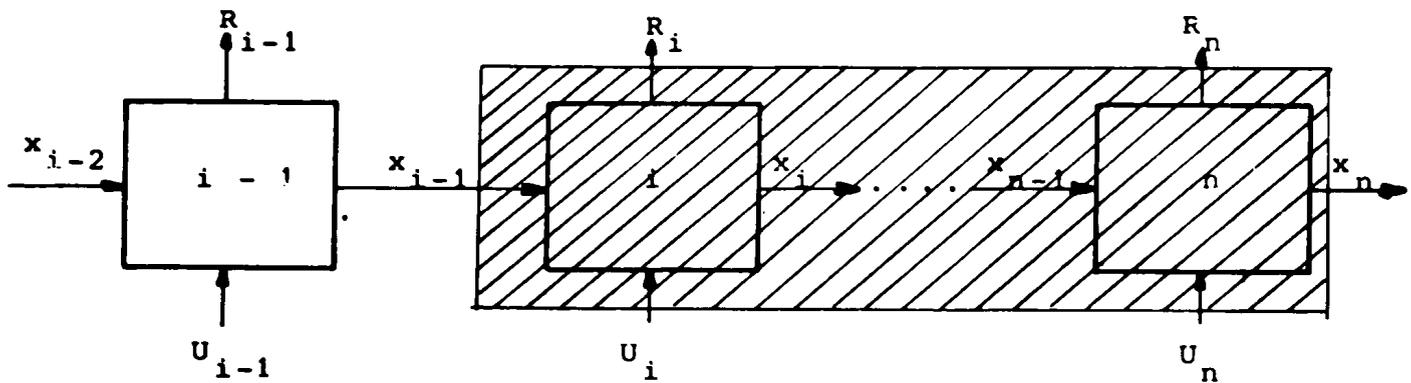
Le principe d'optimalité impose que U_n soit choisi pour optimiser R_n , pour x_{n-1} donné. Et, puisque x_{n-1} peut être déterminé par la connaissance de U_{n-1} et x_{n-2} , f_{n-1}^* peut être écrit :

$$f_{n-1}^*(x_{n-2}) = \underset{U_{n-1}}{\text{opt}} \left[R_{n-1}(x_{n-2}, U_{n-1}) + f_n^*(x_{n-1}) \right] \quad (5)$$

f_{n-1}^* est un optimum relatif au problème défini pour les deux dernières étapes. Nous remarquons que le principe d'optimalité permet de réduire la dimension du problème de deux (4) à un (5). Cela apparaît plus clairement si nous écrivons (2) dans (5).

$$f_{n-1}^*(x_{n-2}) = \underset{U_{n-1}}{\text{opt}} \left[R_{n-1}(x_{n-2}, U_{n-1}) + f_n^*(t_{n-1}(x_{n-2}, U_{n-1})) \right] \quad (6)$$

L'extension aux $(n - i + 1)$ dernières étapes nous donne :



soit :

$$f_n^*(x_{i-1}) = \underset{U_i}{\text{opt}} \left[R_i(x_{i-1}, U_i) + f_{i-1}^*(x_i) \right] \quad (8)$$

L'équation (8) est l'équation de récurrence permettant d'obtenir l'optimum du critère J en décomposant le problème initial en $i = 1$ à n sous problèmes séparés, résolus en appliquant le principe d'optimalité de BELLMAN.

IV-2-2 - Application au THR

Par analogie, la forme additive des critères J_1 et J_2 permet l'utilisation de cette méthode.

Pour cela, chaque étape représente un réacteur.

Alors, l'expression du critère et de l'équation d'état s'écrivent dans notre cas :

$$J = \sum_{i=1}^5 R_i (x_{i-1}, m_{i-1}, m_i)$$

$$x_i = t_i (x_{i-1}, m_{i-1}, m_i, U_i)$$

où x_i = Concentration Fe^{2+} à la sortie du réacteur i

U_i = Débit Oxygène au réacteur i

m_i = pH du réacteur i .

Afin de respecter un fonctionnement cohérent de l'hydrolyse, les variables x_i , m_i sont contraintes par :

$$0,5 < x_i < 16 \quad (9)$$

$$2,7 < m_i < 3,8 \quad \text{g/l} \quad i = 1 \text{ à } n \quad (10)$$

De plus les conditions de précipitation imposent :

$$x_i \leq x_{i-1} \quad i = 1 \text{ à } n \quad (11)$$

A chaque étape i , nous supposons qu'une discrétisation de l'intervalle $[0,5;10]$ des entrées, sorties en 17 valeurs possibles satisfait à la précision désirée :

$$x_i = 0,5 - 1 - 2 - \dots - 16.$$

Nous obtenons ainsi des valeurs de x_i, x_{i-1} à $\pm 0,5$ g/l, ce qui ne change pas notablement le point de fonctionnement, les mesures étant effectuées à $\pm 0,2$ g/l (cf. chap.III-A1). Nous verrons que cette hypothèse se vérifie sur les résultats.

De même, l'intervalle $[2,7 ; 3,8]$ des m_i est discrétisé en 12 valeurs. Nous obtenons le pH à $\pm 0,05$ ce qui correspond à la précision de mesure.

$$m_i = 2,7 \dots 3,8.$$

Enfin, le pH étant un paramètre : à chaque étape i , pour chaque valeur de x_i , nous recherchons l'optimum pour chaque valeur de m_i . Nous avons ainsi, au maximum à chaque étape : 17 sous-problèmes à résoudre et pour chaque sous problème : 12 "sous-sous-problèmes". (fig. IV-2).

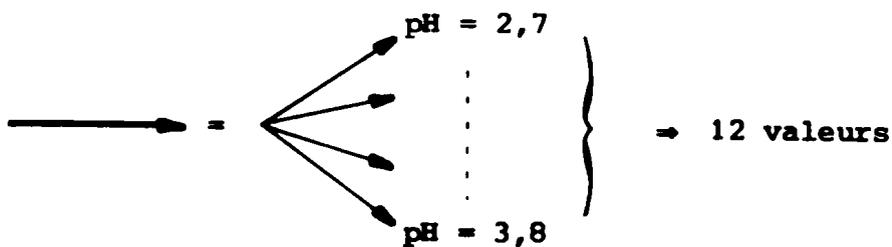
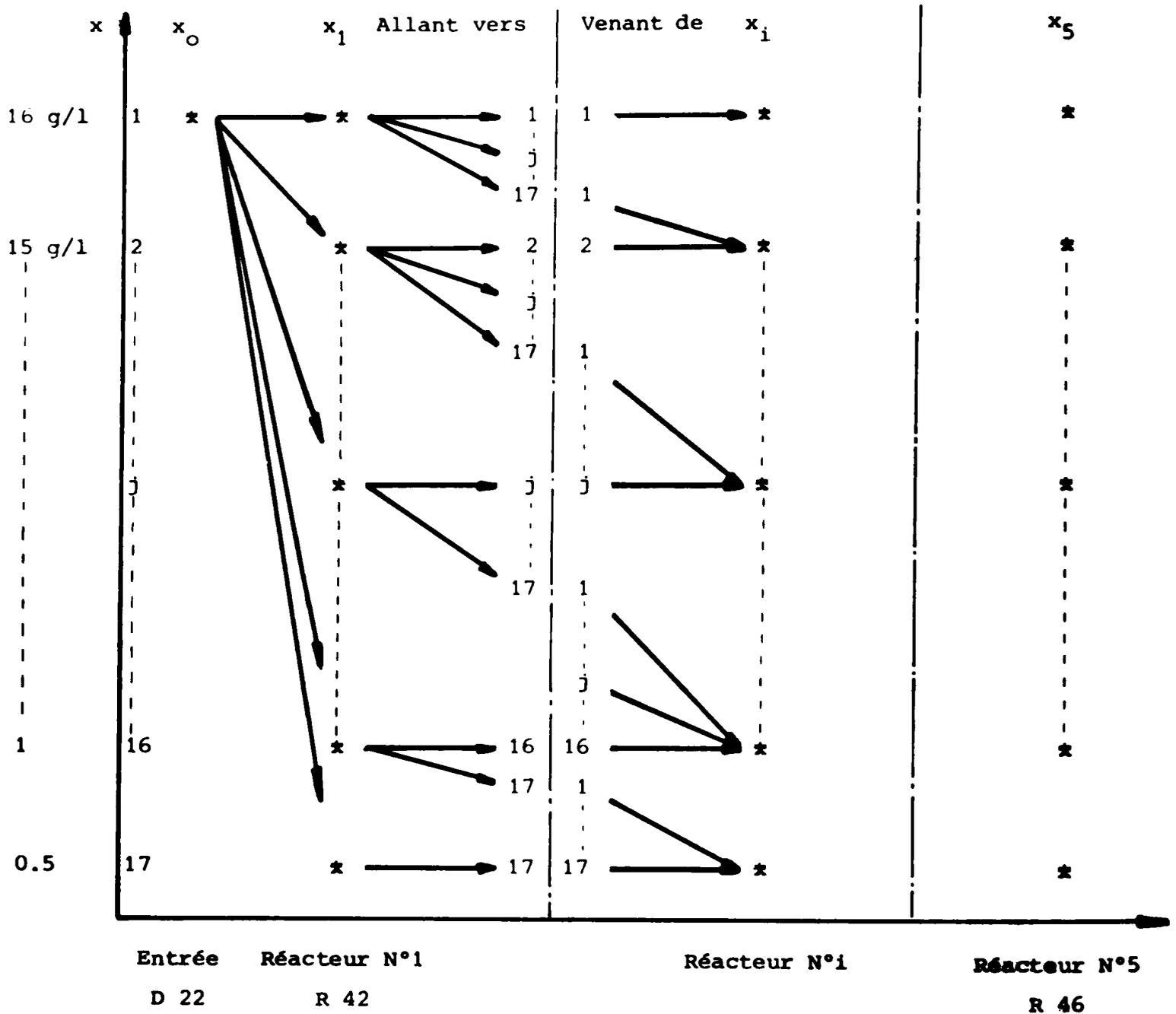


Fig. IV-2

Remarque :

Comme nous l'avons déjà signalé, les modèles obtenus par des méthodes statistiques ne nous permettent pas beaucoup de latitude autour des intervalles de variation des variables.

C'est pour cela que nous avons restreint l'équation (9) à

$$0,5 \leq x_i \leq X_i \text{ max.} \quad (12)$$

où $X_i \text{ max}$ = Valeur maximum de concentration Fe^{2+} observée dans la campagne de mesures ayant permis l'obtention du modèle, dans le réacteur i .

Le problème ne se pose que pour la valeur maxi de concentration Fe^{2+} car n'oublions pas que nous effectuons l'étude sur un processus en fonctionnement normal auquel il n'est pas possible de faire subir certaines variations. En particulier, nous ne pouvons pas nous permettre d'avoir plus de 2 g/l de Fe^{2+} à la sortie du dernier réacteur.

IV-3 - RESULTATS :

Le problème à résoudre est donc le suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Min } J = \sum_{i=1}^n R_i (x_{i-1}, m_{i-1}, m_i) \quad (13) \\ \text{sous } x_i = t_i (x_{i-1}, m_{i-1}, m_i, u_i) \quad (14) \end{array} \right.$$

La résolution de l'équation (13) nous fournit, à l'étape i , les valeurs optimales x_{i-1} , m_{i-1} , m_i à partir desquelles nous pouvons calculer par l'équation (14), la valeur de U_i donnant la sortie x_i désirée.

Or, comme nous l'avons expliqué (cf. III-2-1-2), cela n'est possible que pour le réacteur 42. Cependant, en vue d'une commande future du processus, l'expérience nous permet de donner une valeur approchée du débit Oxygène dans chaque réacteur pour une valeur de pH donnée. Sachant qu'une régulation du débit Oxygène en fonction de la concentration Fe^{2+} sera mise en place, nous adoptons le tableau suivant donnant le rendement Oxygène par réacteur pour chaque valeur de pH:

<u>pH</u>	3,8	3,7	3,6	3,5	3,4	3,3	3,2	3,1	3	2,9	2,8	2,7
<u>R 42</u>	1	0,975	0,95	0,925	0,9	0,875	0,85	0,825	0,8	0,775	0,75	0,725
<u>R 43</u>	0,8	0,775	0,75	0,725	0,7	0,675	0,65	0,625	0,6	0,575	0,55	0,525
<u>R 44</u>	0,6	0,575	0,55	0,525	0,5	0,475	0,45	0,425	0,4	0,375	0,35	0,325
<u>R 45</u>	0,5	0,475	0,45	0,425	0,4	0,375	0,35	0,325	0,3	0,275	0,25	0,225

Avec cette méthode nous obtenons les résultats suivants pour différentes valeurs de α_1 et α_2 .

Les conditions d'entrée sont les suivantes :

Débit = $100 \text{ m}^3/\text{h}$; $T = 80^\circ \text{C}$, $\text{pH} = 2.2$, $[\text{Fe}^{2+}] = 14 \text{ g/l}$

$$\alpha_2 / \alpha_1 = 0,9$$

	pH	$[\text{Fe}^{2+}]$	Débit O_2
R 42	3,2	7	82
R 43	3	2	82,6
R 44	3,8	1	16,67
R 45	3	0,5	24,4

$\text{Zn/Fe} = 0,105$, Temps de filtration = 0,6 mn

$$\alpha_2 / \alpha_1 = 0,7$$

	pH	$[\text{Fe}^{2+}]$	Débit O_2
R 42	3,2	7	82
R 43	3	2	82,7
R 44	2,9	1	26
R 45	2,9	0,5	27,7

$\text{Zn/Fe} = 0,07$, Temps de filtration = 2,9 mn

$$\alpha_2 / \alpha_1 = 0,5$$

	pH	$[\text{Fe}^{2+}]$	Débit O_2
R 42	3,1	8	72,3
R 43	3	2	99,2
R 44	2,9	1	26,3

R 45 2,9 0,5 27.7

Zn/Fe = 0,06 , Temps de filtration = 5,17 mn

$$\alpha_2 / \alpha_1 = 0,3$$

	pH	[Fe ²⁺]	Débit O ₂
R 42	3,1	8	72,4
R 43	3	2	100
R 44	2,9	1	26
R 45	2,8	0,5	32

Zn/Fe = 0,05 , Temps de filtration = 6,1 mn

$$\alpha_2 / \alpha_1 = 0,1$$

	pH	[Fe ²⁺]	Débit O ₂
R 42	3	8	74,56
R 43	2,9	2	103,4
R 44	2,8	1	28,1
R 45	2,7	0,5	38

Zn/Fe = 0,046 , Temps de filtration = 10,4 mn

Avant d'interpréter ces résultats, quelques remarques s'imposent :

- Nous n'avons optimisé que sur les quatre premiers réacteurs. Le dernier, nous le savons, sert à l'acidification de la pulpe à pH \simeq cte. L'effet de cette étape est donc nul sur la Précipitation, et constant sur la Filtration.

- Afin d'assurer la précipitation totale du Fer, nous avons imposé une concentration de 0,5 g/l de Fe^{2+} sur le réacteur 45, et un profil de précipitation dans les autres réacteurs tel que leur concentration maximale en Fe^{2+} soit respectivement : 10 - 6 - 2 g/l, nous verrons par la suite pourquoi.

- La campagne de mesures ayant permis l'obtention des modèles utilisés s'est effectuée avec une concentration Fe^{2+} à l'entrée de l'ordre de 15 g/l alors qu'elle est généralement de 20 g/l, d'où la différence avec la courbe de la fig. I-6.

Suivant l'importance que nous accordons à la Filtration nous obtenons un fonctionnement :

- Quasi-constant en ce qui concerne la précipitation du Fer,
- A pH d'autant plus grand que la Filtration devient importante.

Ce type de fonctionnement est très proche de la conduite actuelle qui s'avère effectivement donner les meilleurs résultats. Rappelons qu'au début de l'étude, la plus grande partie du Fer était précipitée dans le deuxième réacteur (R 43). (Cf. I-4-1).

Cependant, de nombreux essais ont été faits, pour lesquels nous n'imposons pas la même précipitation minimale sur chaque réacteur. Cela devient, sur le dernier réacteur, à accepter qu'une partie du Fer ne soit pas précipitée. Alors, nous obtenons pour les mêmes entrées des allures de précipitation beaucoup plus lentes, aux même pH.

Par exemple, pour $\alpha_2 / \alpha_1 = 0,3$, nous imposons un profil de précipitation tel que la concentration maximale en Fe^{2+} de chaque réacteur soit respectivement : 12 - 10 - 8 - 6 g/l, et nous obtenons :

	pH	$[\text{Fe}^{2+}]$	Débit
R 42	3,1	12	24
R 43	3	10	33
R 44	2,9	8	50
R 45	2,8	6	280
Z/F \approx 0			Temps de Filtration = 5,9 mn

Ceci confirme une hypothèse émise par des Ingénieurs de la Société VIEILLE-MONTAGNE, selon laquelle, une précipitation rapide crée des blocs de précipité enfermant des grains de Calcine qui ne peuvent plus réagir.

En d'autres termes, il serait possible d'ajouter un réacteur pour étaler la précipitation du Fer, la diminution des pertes Zinc serait très appréciable. Mais à ce niveau, d'autres contraintes interviennent, qui sortent du cadre de ce mémoire.

Donc dans les conditions opératoires actuelles, il n'est pas possible d'envisager un fonctionnement tel que celui que nous venons de décrire dans le dernier tableau. De plus, les conditions d'une bonne filtration nécessitent un pH décroissant tout au long de la chaîne et nous savons que le rendement Oxygène diminue avec le pH. Donc il faut précipiter au maximum en tête comme il a été décrit dans les tableaux précédents pour éviter un gaspillage d'Oxygène.

En résumé, les conditions d'obtention d'un bon compromis pertes Zinc-filtration sont décrites dans le tableau correspondant à $\alpha_2 / \alpha_1 = 0,7$ ou $\alpha_2 / \alpha_1 = 0,5$, suivant le cas, pour lesquelles :

- Nous assurons presque la totalité de la précipitation du Fer dans les deux premiers réacteurs avec un profil de pH légèrement différent de celui décrit au premier chapitre. Fig. IV-3.

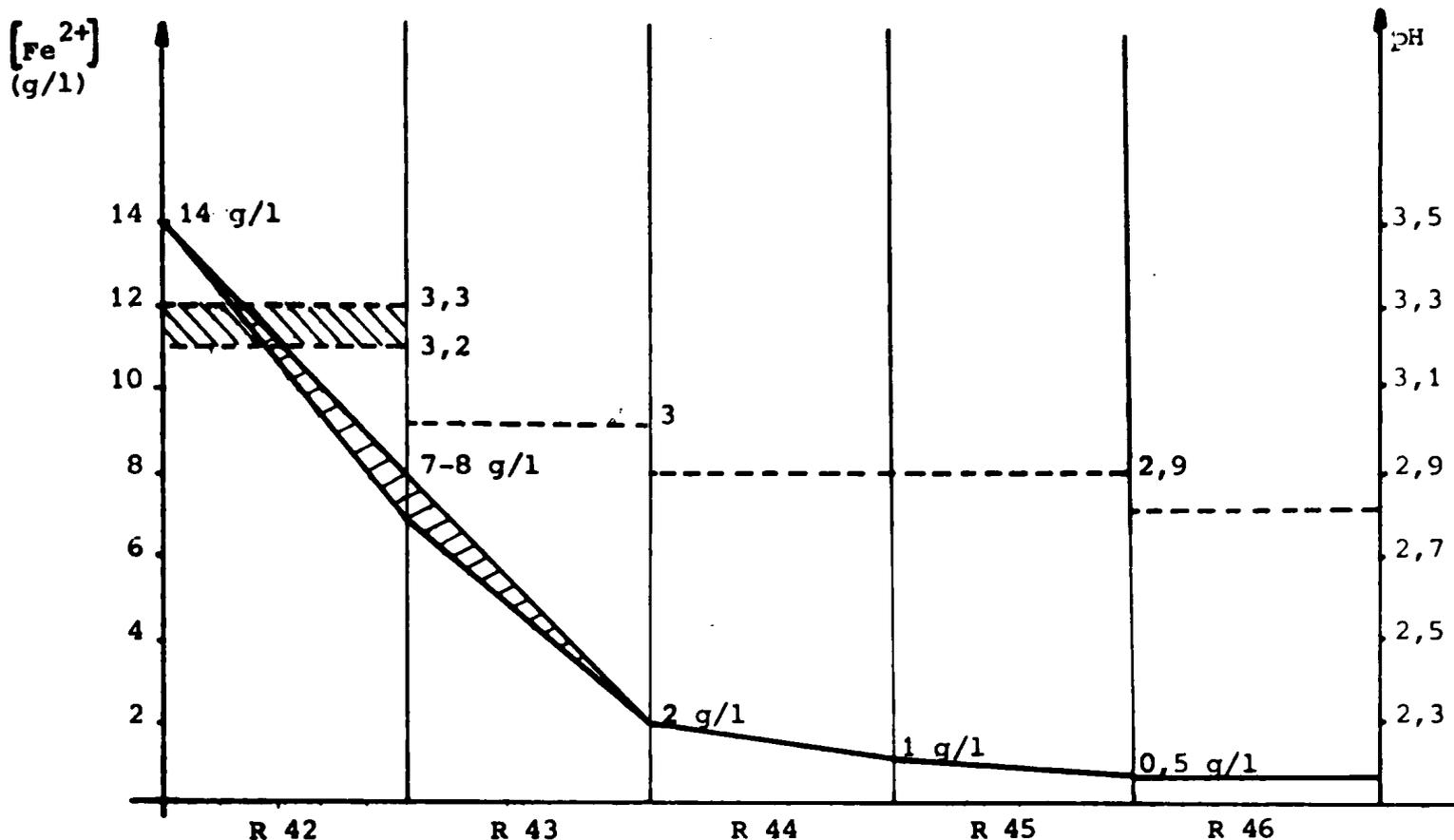


Fig.IV-3 - Fonctionnement optimal de l'Hydrolyse

Remarque :

Nous donnons à titre de comparaison les valeurs moyennes du rapport Zn/Fe à la sortie du réacteur 45 et du temps de filtration obtenues lors de la campagne de mesures :

$$\text{Zn/Fe}_{45} = 0,12 \quad ; \quad \text{Temps de filtration} = 4,5 \text{ mn.}$$

Bien que non mentionné ici, le débit Oxygène calculé à partir des deux modèles définis en III-2-1-2 donne des résultats très proches de ceux estimés à partir de la matrice de rendement pour le seul réacteur 42.

CONCLUSION

L'adaptation de la méthode de programmation dynamique à notre problème a été facilitée par la structure cascade de l'Hydrplyse qui a permis l'obtention de critères additifs séparables.

Bien que la mise en oeuvre informatique soit assez lourde, elle est compensée par la rapidité de calcul.

De plus, il est heureux de constater que malgré les restrictions déjà énoncées concernant les modèles statistiques nous obtenons des résultats très satisfaisants qui confirment tout à fait l'orientation prise par l'Industriel depuis le début de l'étude.

C O N C L U S I O N

Avant toute chose, le travail que nous avons effectué, en collaboration avec plusieurs équipes de la Société VIEILLE-MONTAGNE a demandé pour chacun une phase d'adaptation.

Cette toute première période a eu pour objectif de familiariser des équipes ayant chacune leur langage propre et de bien prendre en compte le but commun et les contraintes mutuelles liées aux conditions de travail respectives.

L'analyse d'un processus industriel passe d'abord par une étape fondamentale que l'on peut appeler Mesure -Instrumentation. On ne peut se dispenser de cette étape, souvent longue et coûteuse, sans encourir de gros risques d'erreurs lors d'une analyse quantitative des données, en vue de l'établissement de modèles. Modèles dont la recherche nécessite des mesures fiables et significatives.

Par contre, cette fiabilité peut rapidement être trouvée à partir d'une analyse qualitative des données qui permet par ses différentes étapes d'approfondir la connaissance du processus. Nous avons montré comment l'existence de relations linéaires ou non entre variables peut être mise en valeur par une étude conjointe des techniques d'analyse des données classique et informationnelle. L'analyse informationnelle, conduite à partir d'une discrétisation en intervalles équiprobables, permet ainsi la mise en évidence immédiate de certaines formes de non-linéarités.

Cependant, vu le faible nombre d'observations dont nous disposons en général sur des processus industriels, ces méthodes d'analyse, ne peuvent être utilisées efficacement qu'à partir d'un dialogue constant avec les spécialistes du processus afin de confirmer ou non les hypothèses émises.

En effet, les résultats obtenus dans la recherche de points de consigne mettant en jeu des critères conflictuels montrent qu'une modélisation de ce type de processus à partir des données, est concevable.

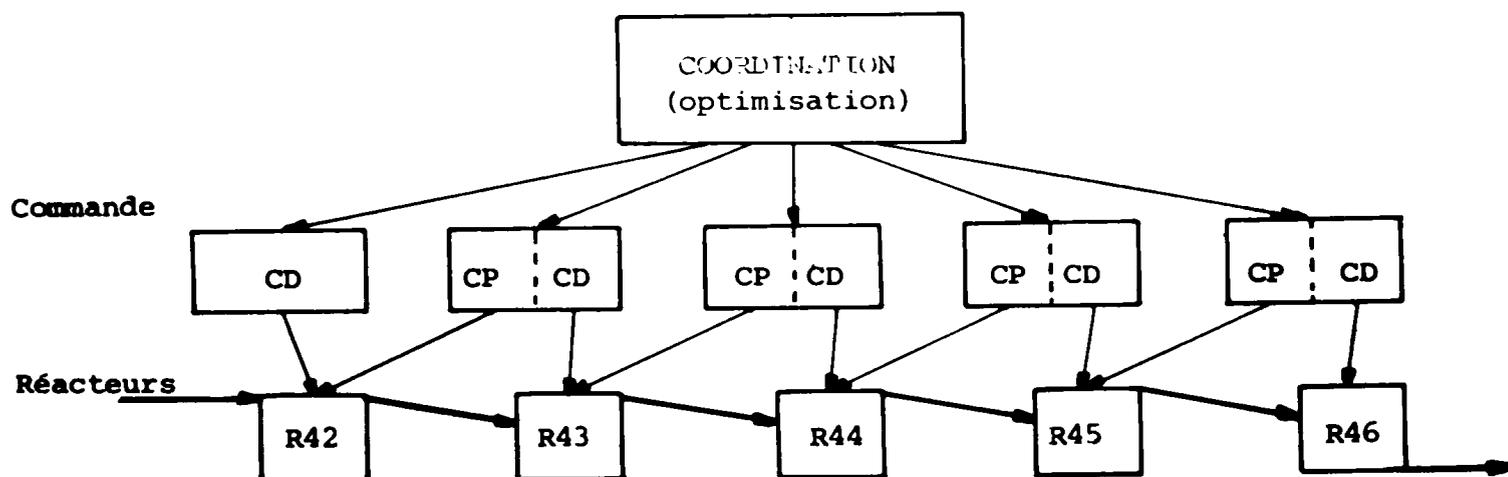
Par contre, certains de ces critères peuvent être difficiles à quantifier lors d'une conduite en ligne du système. Aussi est-il envisageable de définir un problème d'optimisation multicritère prenant en compte, sur la base des concepts de la théorie des sous-ensembles flous, des termes linguistiques qualifiant ces mêmes critères. Et, ce qui n'est pas négligeable, les manipulations sur le chantier en seront facilitées.

Cette analyse, uniquement statique a permis l'obtention d'une très bonne maîtrise du système. Mais, afin de satisfaire l'objectif initial d'Automatisation, il convient d'aborder maintenant la phase Analyse-Modélisation dynamique; ce qui devrait être réalisé rapidement compte tenu de l'amélioration constante des moyens de mesure en ligne.

Pour cela nous rechercherons une structure de commande à deux niveaux :

- Un niveau supérieur utilisant les techniques d'optimisation présentées ci-dessus.

- Un niveau de commande décentralisée qui exploitera la structure série de la cascade de réacteurs : l'objectif défini pour chaque réacteur i sera atteint par une action directe sur ce réacteur i et une action prédictive sur le réacteur $i-1$.



BIBLIOGRAPHIE

- 1 **ASHBY**
Measuring the internal Information exchange in a system.
CYBERNETICA - N° 1 PP. 5-22 - (1965)

- 2 **ATLAN M.**
L'organisation biologique et la théorie de l'Information.
HERMANN - PARIS - (1972)

- 3 **BELLMAN R.E. - DREYFUS S.E.**
La programmation dynamique et ses applications.
DUNOD - PARIS - (1965)

- 4 **BENZECRI J.P.**
L'analyse des données - Tomes 1 et 2.
DUNOD - PARIS - (1980)

- 5 **BLANDIN P.**
Commande hiérarchisée d'un complexe de production de soufre.
Thèse de Docteur 3è cycle - N° 1852
TOULOUSE - (1976)

- 6 **CAILLIEZ F. - PAGES J.P.**
Introduction à l'analyse des données.
SMASH - PARIS - (1976)

- 7 **CHACON E.**
Contribution à l'analyse structurale par la Théorie
de l'Information.
Thèse de Docteur-Ingénieur
TOULOUSE - (1981)

- 8 **CONANT R.**
Information transfer in complex system with application
to regulation.
Thèse UNIVERSITY OF ILLINOIS - U.S.A. - (1968)

- 9 CONANT R.
Detecting subsystems of a Complex System
IEEE - Trans on Syst. Man And Cyb.
PP 550 - 553 - (Septembre 1972)
- 10 CONANT R.
Laws of information wich govern systems.
IEEE - Trans on Syst. Man And Cyb.
SMC N° 4 - PP. 240 - 255 - (1976)
- 11 DELERIS M. - CHACON E. - TITLI A.
Analyse structurale de systèmes complexes : **Application**
à une unité de production de Zinc.
Congrès IFAC - RABAT (Maroc) - (1980)
- 12 DELVAUX R.
Lixiviation de minerais de Zinc grillés selon le
procédé Goethite.
METALLURGIE XVI-3 - (1976)
- 13 DRAPER N. - SMITH H.
Applied regression analysis.
J. WILEY AND SONS - NEW-YORK - (1967)
- 14 DUFOUR J.
Méthodes et méthodologie d'analyse de systèmes complexes.
Application aux procédés industriels et aux systèmes macro-
économiques.
Thèse d'Etat - N° 70-17 - LYON - (1979)
- 15 DUSSAUCHOY A.
Résultats récents en théorie de l'information : **application**
à l'analyse structurale.
COLLOQUE STRUCTURES ECONOMIQUES et ECONOMETRIE - LYON - (1980)
- 16 FREUND R.J. - MINTON P.D.
Regression methods : A tool for data analysis.
Statistics : Text books and monographs - Vol 30
NEW-YORK - (1979)

- 17 **GRATELOUP G. - BLANDIN P. - TITLI A**
La commande hiérarchisée : ses principes généraux
et son application à un complexe de production de Soufre.
COLLOQUE MODELISATION et OPTIMISATION DES PROCÉDES CHIMIQUES -
TOULOUSE - (Mai 1977)
- 18 **GROSS C.**
A chimie nouvelle systèmes nouveaux de contrôle - commande
de processus.
AUTOMATISMES N° 87 - (Mai 1980)
- 19 **GUIAŞU S.**
Information theory with applications .
MC GRAW-HILL - (1977)
- 20 **LEBART L. - FENELON J.P.**
Statistique et information appliquées.
DUNOD - PARIS (1975)
- 21 **MALINVAUD E.**
Méthodes statistiques de l'économétrie
DUNOD - 3è édition - PARIS - (1978)
- 22 **PISKOUNOV N.**
Calcul différentiel et intégral - Tome 2
MIR - U.R.S.S. - (1972)
- 23 **PREVOT P.**
Système informatique pour l'analyse des procédés
industriels
Thèse d'Etat - IDE 76-016 - LYON - (1976)
- 24 **PREVOT P. - VITRY G.**
Analyse des correspondances et procédés complexes
Automatismes (Octobre 1976)

- 25 RAO S.S.
Optimization theory and applications.
WILEY EASTERN LIMITED - (1978)
- 26 RICHTIN M.
Analyse structurale des systèmes complexes en vue
d'une commande hiérarchisée.
Thèse d'Etat - N° 674 - TOULOUSE - (1975)
- 27 RICHTIN M.
L'analyse en composantes principales normées : Principes
et programmes.
Note Interne N° 75126 - LAAS - TOULOUSE - (1975)
- 28 ROUBINE E.
Introduction à la théorie de la communication.
Tome III : théorie de l'Information .
MASSON - PARIS (1970)
- 29 SHANNON C.E.
A mathematical theory of communication.
BELL SYT. TECH. JOURN. N° 27, PP 379-423, PP 623-656
(1956)
- 30 SPATARU A.
Théorie de la transmission de l'information.
Tome I : SIGNAUX et BRUITS
MASSON - PARIS - (1970)
- 31 SWENKER A.G.
Practical procedures for adjustment of industrial measuring
data.
Rapport final de l'école d'été : Théorie et pratique de l'iden-
tification et de la modélisation des systèmes.
ENSAE - TOULOUSE (Juillet 1972)

- 32 **TITLI A. et Al.**
Analyse et commande des systèmes complexes.
CEPADUES - TOULOUSE - (1979)
- 33 **VIEILLE-MONTAGNE**
Schéma synoptique de l'élaboration du Zinc à l'usine
VIEILLE-MONTAGNE de VIVIEZ
Note interne
- 34 **VION Ph. - TITLI A. - GRATELOUP G.**
L'analyse informationnelle et structurale des systèmes
complexes : Application à la simulation des grands systèmes
de génie chimique.
COLLOQUE MODELISATION ET OPTIMISATION DES PROCEDES
CHIMIQUES - TOULOUSE (Mai 1977)
- 35 **YVINEC B. - MILGRAM M. - DUBUISSON B.**
Estimation de l'entropie dans le cas continu en vue de la
décomposition des systèmes complexes.
RAIRO - Automatique - Vol 12 N° 1 (1978)